1714

I hereby certify that this correspondence is being deposited with the United States Postal Service as Pirst Class Mail in an envelope addressed to Assistant Commissioner for Patents, Washington, D.C., 20231, on the date indicated below.

BY R. Klumora

ATE: June 19 a

6-25-01

<u>PATENT</u>

JUN 2 1 2001

THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In TORADEMARIA Par

Patent Application of

Katsuhiko HAJI et al.

Group Art Unit: 1714

RECEIVED
TO 1700

Conf. No.:

4404

Appln. No.:

09/826,282

Filed:

April 4, 2001

: Attorney Docket

r neu.

.,

: No. **8305-208US** : **(NP082-1)**

For:

GASOLINE ADDITIVE FOR DIRECT

INJECTION GASOLINE ENGINE

CLAIM OF FOREIGN PRIORITY AND TRANSMITTAL OF PRIORITY DOCUMENT

Applicant hereby claims the right of foreign priority under 35 U.S.C. Section 119 for the above-identified patent application. The claim of foreign priority is based upon:

Patent Application No.

10-342308

10-284068

Filed in Japan on

November 17, 1998

October 6, 1998

and the benefit of these dates are claimed.

Submitted herewith are certified copies of the above-referenced Applications. It is submitted that these documents complete the requirements of 35 U.S.C. Section 119, and benefit of the foreign priorities are respectfully requested.

Respectfully submitted,

KATSUHIKO HAJI et al.

1 20-1 1

WILLIAM W. SCHWARZE

Registration No. 25,918

AKIN, GUMP, STRAUSS, HAUER & FELD, L.L.P.

One Commerce Square

2005 Market Street - Suite 2200 Philadelphia, PA 19103-7086 Telephone: (215) 965-1200

Direct Dial: (215) 965-1270 Facsimile: (215) 965-1210

E-Mail:sneumann@akingump.com

Attorney for Applicant

WWS:srn Enclosures



別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 Date of Application:

1998年10月 6日

RECEIVED

JUN 2 2 2001

TC 1700

出 願 番 号 Application Number:

出 願 Applicant (s): 平成10年特許願第284068号

日石三菱株式会社

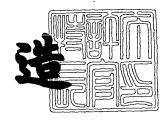
کی کھر

2001年 3月23日

特許庁長官 Commissioner, Patent Office







特平10-284068

【書類名】 特許願

【整理番号】 11-0047

【提出日】 平成10年10月 6日

【あて先】 特許庁長官

【国際特許分類】 C10L 1/18

【発明の名称】 ガソリン添加剤

【請求項の数】 1

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市中区千鳥町8番地日本石油株式会社中央

技術研究所内

【氏名】 土師 勝彦

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市中区千鳥町8番地日本石油株式会社中央

技術研究所内

【氏名】 長尾 正基

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市中区千鳥町8番地日本石油株式会社中央

技術研究所内

【氏名】 秋本 淳

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市中区千鳥町8番地日本石油株式会社中央

技術研究所内

【氏名】 吉田 正寛

【特許出願人】

【識別番号】 000004444

【氏名又は名称】 日本石油株式会社

【代理人】

【識別番号】 100093540

【弁理士】

特平10-284068

【氏名又は名称】 岡澤 英世

【代理人】

【識別番号】

100080942

【弁理士】

【氏名又は名称】

野村 滋衞

【手数料の表示】

【予納台帳番号】

054656

【納付金額】

21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】

明細書 1

【物件名】

要約書 1

【プルーフの要否】

要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 ガソリン添加剤

【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記の一般式(1)で表される含窒素化合物からなる筒内直接噴射式ガソリンエンジン用ガソリン添加剤。

【化1】

$$\begin{bmatrix} R^1 & \begin{bmatrix} C & R^2 & R^3 \\ C & C & C \end{bmatrix} & \begin{bmatrix} C & R^6 \end{bmatrix} & \begin{bmatrix}$$

(一般式(1)において、 R^1 は水素または炭素数 $1\sim 30$ の炭化水素基を示し、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 はそれぞれ別個に水素、炭素数 $1\sim 16$ の炭化水素基または下記一般式(2)で表される基を示し、aは $1\sim 200$ の整数であり、 R^6 は炭素数 $1\sim 10$ の炭化水素基を示し、B0 は B1 であり、B2 は B3 は B4 によってあり、B3 は B4 によってあり、B6 は B5 には B6 には B7 によってあり、B8 によってあり、B8 によってあり、B8 によってあり、B9 によってある。)【化 B1 におっている B2 によってある。)【化 B3 におっている B3 によっている B3 によっている B4 によっている B5 によっている B6 によっている B7 によっている B8 によっている B9 によっている B9 によっている B1 によっている B3 によっている B3 によっている B3 によっている B4 によっている B5 によっている B6 によっている B7 によっている B8 によっている B9 によって

$$-\frac{R^{7}}{C} - O + R^{9} - O + R^{10}$$
(2)

(一般式(2)において、 R^7 および R^8 はそれぞれ個別に水素、炭素数 $1\sim 1$ 0 の炭化水素基または炭素数 $2\sim 1$ 0 のアルコキシアルキル基を示し、 R^9 は炭素数 $2\sim 6$ のアルキレン基を示すか、あるいはアルコキシアルキル基を置換基として有する総炭素数 $4\sim 1$ 0 のアルキレン基を示し、 R^{10} は水素または炭素数 $1\sim 3$ 0 の炭化水素基を示し、 R^{10} は水素基を示し、 R^{10} は水素基を示し、 R^{10} 0 の 変数を示す。)

A群

$$A1: -O-CO-$$

$$A2:-CO-$$

$$A3:-O-CO-R^{11}-$$

$$(R^{11}$$
は炭素数1 \sim 6のアルキレン基を示す)

$$A4: -O-CO-O-R^{12}-$$

 $(R^{12}$ は炭素数1~6のアルキレン基を示す)

$$A 5 : -CO - O - R^{13} -$$

 $(R^{13}$ は炭素数1~6のアルキレン基を示す)

B群

B1:水素

B2:炭素数1~30の炭化水素基

B3:下記一般式(3)で表されるアルカノール基 -R¹⁴-OH (3)

(一般式(3)において、 R^{14} は炭素数 $1 \sim 6$ のアルキレン基を示す。)

B4:下記一般式(4)で表される含窒素基

【化3】

(一般式(4)において、 R^{15} は炭素数 $2\sim 6$ のアルキレン基を示し、 R^{16} は水素、炭素数 $1\sim 4$ のアルキル基または上記一般式(3)で表される基を示し、 R^{17} は水素、炭素数 $1\sim 3$ 0の炭化水素基または上記一般式(3)で表される基を示し、 R^{17} は水素、炭素数 $1\sim 3$ 0の炭化水素基または上記一般式(3)で表される基を示し、 R^{17} は水素、炭素数 $1\sim 1$ 0の整数を示す。)

B5:下記一般式(5)で表される基

【化4】

(一般式(5)において、 R^{18} は炭素数 $2\sim6$ のアルキレン基を示し、 R^{19} 、 R^{20} 、 R^{21} および R^{22} はそれぞれ別個に水素、炭素数 $1\sim1$ 0 の炭化水素基また

は水酸基を示し、Yはメチレン基、炭素数1~10の炭化水素基もしくは水酸基で置換されたメチレン基、イミノ基、炭素数1~10の炭化水素基もしくは水酸基で置換されたイミノ基または酸素を示し、hはe=1の場合は1であり、e=2の場合は0または1である(但し、h=0の場合、一般式(5)中のN(窒素)は、一般式(1)中のN(窒素)に該当する)

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】

本発明は、ガソリンに対する溶解性に優れ、特に筒内直接噴射式ガソリンエンジンの燃焼室内の清浄性に優れたガソリン添加剤に関する。

[0002]

【従来技術】

省資源及び地球温暖化抑制の観点から世界的に化石燃料の使用を減らすことが 求められており、ガソリン自動車に対しては燃費の向上が最大の課題となってい る。一方、都市部ではNOxなどの汚染物質が環境基準を達成していない地域もあ り、ガソリン自動車に対してもさらなる汚染物質の低減が求められている。この ような要求に対しガソリン自動車で燃費の向上及び排出ガス中環境汚染物質の低 減を同時に行うためには、筒内直接噴射式ガソリンエンジンが最も有力であると 考えられている。

従来のガソリンエンジンは吸気ポート内にガソリンを噴射することで、ガソリンと空気の均一予混合気を形成していた。一方筒内直接噴射式ガソリンエンジンはディーゼルエンジンのように燃焼室内に直接ガソリンを噴射する。これにより点火プラグ近傍は濃い混合気であるが燃焼室全体では超希薄となる成層混合気の形成を可能としている。このような成層混合気を形成することで超希薄状態での燃焼(成層燃焼)を可能とし、ディーゼルエンジンレベルまで燃費を向上することが可能となる。また燃焼室内に直接ガソリンを噴射するため、従来のエンジンで起きたようなガソリンの蒸発遅れがなくなり、より精度の高い燃料噴射量制御を可能とする。

[0003]

【発明が解決しようとする課題】

しかし、筒内直接噴射式ガソリンエンジンでは燃焼室内にガソリンを噴射するため、従来のガソリンエンジンとは異なる新たな問題が発生する可能性がある。その一つに燃焼室内、特にキャビティ内に堆積するデポジットがある。筒内直接噴射式ガソリンエンジンに特徴的な成層燃焼では、ピストンの上昇中にピストンのキャビティ内に燃料を噴霧し、跳ね返った燃料が点火プラグ近傍に濃い混合気を形成し燃焼する。この際、ピストンのキャビティ内にデポジットが堆積すると、噴霧された燃料の一部がデポジットに吸着し、点火プラグ近傍の燃料が少なくなったり、到達時間が遅れたりするため、空気/燃料比が乱れ、これに原因して運転性に影響を及ぼしたり、排出ガスが悪化したり、スモークが発生したりする

本発明は、このような状況を鑑み、筒内直接噴射式ガソリンエンジンにおける 燃焼室内、特にキャビティ内の清浄性に優れる特殊な含窒素化合物からなるガソ リン添加剤を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記課題を解決するため鋭意研究を重ねた結果、特定の構造を有する含窒素化合物が、筒内直接噴射式ガソリンエンジンにおける燃焼室内、特にキャビティ内の清浄性に優れていることを見出した。

すなわち、本発明に係るガソリン添加剤は、下記一般式(1)で表される含窒素化合物からなるものである。

【化5]

$$\begin{bmatrix} R^1 & \begin{bmatrix} C & R^2 & R^3 \\ C & C & C \end{bmatrix} & \begin{bmatrix} C & R^6 \end{bmatrix} & \begin{bmatrix}$$

(一般式(1)において、 R^1 は水素または炭素数 $1\sim30$ の炭化水素基を示し、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 はそれぞれ別個に水素、炭素数 $1\sim16$ の炭化水素基または下記一般式(2)で表される基を示し、aは $1\sim200$ の整数であり、

 R^6 は炭素数 $1\sim 1$ 0 の炭化水素基を示し、b は 0 または 1 であり、Z は A 群の中から選ばれる基を示し、c は 0 または 1 であり、X は下記の B 群の中から選れる基を示し、d は $1\sim 3$ 、e は $0\sim 2$ の整数で、かつ d+e=3 である。) 【化 6】

$$- \overset{R^{7}}{\underset{R}{\overset{}}{}_{8}} - O - \frac{1}{\underset{f}{\overset{}}{}_{R}} R^{10}$$
 (2)

(一般式(2)において、 R^7 および R^8 はそれぞれ個別に水素、炭素数 $1\sim 1$ 0の炭化水素基または炭素数 $2\sim 1$ 0のアルコキシアルキル基を示し、 R^9 は炭素数 $2\sim 6$ のアルキレン基を示すか、あるいはアルコキシアルキル基を置換基として有する総炭素数 $4\sim 1$ 0のアルキレン基を示し、 R^{10} は水素または炭素数 $1\sim 3$ 0の炭化水素基を示し、 R^{10} は水素または炭素数 $1\sim 3$ 0の炭化水素基を示し、 R^{10} 0の整数を示す。)

A群

$$A 1 : -O-CO A 2 : -CO A 3 : -O-CO-R^{11} (R^{11}$$
は炭素数1 \sim 6のアルキレン基を示す)
 $A 4 : -O-CO-O-R^{12} (R^{12}$ は炭素数1 \sim 6のアルキレン基を示す)
 $A 5 : -CO-O-R^{13} (R^{13}$ は炭素数1 \sim 6のアルキレン基を示す)

B群

B1:水素

B2:炭素数1~30の炭化水素基

B3:下記一般式(3)で表されるアルカノール基 $-R^{14}-OH$ (3)

(一般式(3)において、 R^{14} は炭素数 $1 \sim 6$ のアルキレン基を示す。)

B4:下記一般式(4)で表される含窒素基

【化7】

$$= R^{15} - N - R^{17}$$

$$= R^{16} - R^{17}$$

$$= R^{15} - R^{17}$$

$$= R^{15} - R^{17}$$

$$= R^{15} - R^{17}$$

$$= R^{15} - R^{17} - R^{17}$$

$$= R^{15} - R^{17} - R^{17}$$

(一般式(4)において、 R^{15} は炭素数 $2\sim 6$ のアルキレン基を示し、 R^{16} は水素、炭素数 $1\sim 4$ のアルキル基または上記一般式(3)で表される基を示し、 R^{17} は水素、炭素数 $1\sim 3$ 0 の炭化水素基または上記一般式(3)で表される基を示し、 R^{17} は水素、炭素数 $1\sim 3$ 0 の炭化水素基または上記一般式(3)で表される基を示し、 R^{17} は水素、炭素数 $1\sim 5$ の整数を示す。)

B5:下記一般式(5)で表される基 【化8】

(一般式 (5) において、 R^{18} は炭素数 $2 \sim 6$ のアルキレン基を示し、 R^{19} 、 R^{20} 、 R^{21} および R^{22} はそれぞれ別個に水素、炭素数 $1 \sim 1$ 0の炭化水素基または水酸基を示し、Yはメチレン基、炭素数 $1 \sim 1$ 0の炭化水素基もしくは水酸基で置換されたメチレン基、イミノ基、炭素数 $1 \sim 1$ 0の炭化水素基もしくは水酸基で置換されたイミノ基または酸素を示し、 R^{19} 、 R^{20} 、 R^{21} および R^{22} は、 R^{20} は、 R^{20} は、 R^{20} のの炭化水素基もしくは水酸基で置換されたメチレン基、イミノ基、炭素数 R^{20} のの炭化水素基もしくは水酸基で置換されたイミノ基または酸素を示し、 R^{20} の炭化水素基もしくは水酸基で置換されたイミノ基または酸素を示し、 R^{20} のの炭化水素基もしくは水酸基で置換されたイミノ基または酸素を示し、 R^{20} のの炭化水素基もしくは水酸基で置換されたイミノ基または酸素を示し、 R^{20} のの炭化水素基もしくは水酸基を可能を表する。 R^{20} の炭化水素基もしくは水酸素で置換されたイミノ基または酸素を示し、 R^{20} の皮膚に変素を示し、 R^{20} の炭化水素基もしくは水酸素で置換されたイミノ基または酸素を示し、 R^{20} の炭化水素基もしくは水酸素を可能を表する。 R^{20} の炭化水素基もしくは水酸素を可能を表する。 R^{20} の炭化水素素を示し、 R^{20} の炭化水素素を示して、 R^{20} の炭化水素素を示し、 R^{20} の炭化水素素を示して、 R^{20} の炭化水素素を示し、 R^{20} の炭化水素素を示して、 R^{20} の炭化水素素を含む、 $R^$

一般式(1)の含窒素化合物からなる本発明のガソリン添加剤は、筒内直接噴射式ガソリンエンジンにおける燃焼室内、特にキャビティ内を清浄に保持する能力に優れ、特にエンジンの冷機時などの過酷な条件下において優れた清浄効果を発揮し、しかもそれ自身はスラッジ化することがない。

[0005]

【発明の実施の形態】

以下、本発明の内容をさらに詳細に説明する。

本発明の含窒素化合物を表す一般式(1)において、その R^1 は水素または炭

素数 $1 \sim 30$ の炭化水素基を示すが、 R^1 は水素であるか、あるいは炭素数 $1 \sim 24$ の直鎖状または分枝状のアルキル基、炭素数 $2 \sim 24$ の直鎖状または分枝状のアルケニル基、炭素数 $5 \sim 13$ のシクロアルキル基またはアルキルシクロアルキル基、炭素数 $6 \sim 18$ のアリール基またはアルキルアリール基、炭素数 $7 \sim 19$ のアリールアルキル基などのいずれかであることが好ましい。

R¹として好ましいアルキル基としては、メチル基、エチル基、nープロピル基、イソプロピル基、nーブチル基、イソブチル基、secーブチル基、tertーブチル基、直鎖または分枝ペンチル基、直鎖または分枝へキシル基、直鎖または分枝へプチル基、直鎖または分枝プラル基、直鎖または分枝アシル基、直鎖または分枝ドデシル基、直鎖または分枝トリデシル基、直鎖または分枝テトラデシル基、直鎖または分枝ペンタデシル基、直鎖または分枝へキサデシル基、直鎖または分枝へプタデシル基、直鎖または分枝オクタデシル基、直鎖または分枝ノナデシル基、直鎖または分枝イコシル基、直鎖または分枝イコシル基、直鎖または分枝イコシル基、直鎖または分枝トリコシル基、直鎖または分枝テトラコシル基などが挙げられる。

R¹として好ましいアルケニル基には、ビニル基、プロペニル基、イソプロペニル基、直鎖または分枝プテニル基、ブタジエニル基、直鎖または分枝ペンテニル基、直鎖または分枝ヘキセニル基、直鎖または分枝へプテニル基、直鎖または分枝デセニル基、直鎖または分枝デセニル基、直鎖または分枝デセニル基、直鎖または分枝トリデセニル基、直鎖または分枝テトラデセニル基、直鎖または分枝ペンタデセニル基、直鎖または分枝ヘキサデセニル基、直鎖または分枝ヘプタデセニル基、オレイル基などの直鎖または分枝オクタデセニル基、直鎖または分枝ノナデセニル基、直鎖または分枝イコセニル基、直鎖または分枝ヘンイコセニル基、直鎖または分枝ドコセニル基、直鎖または分枝トリコセニル基、直鎖または分枝テトラコセニル基、直鎖または分枝テトラコセニル基などが挙げられる。

R¹として好ましいシクロアルキル基としては、シクロペンチル基、シクロヘ キシル基、シクロヘプチル基などが包含され、同じく好ましいアルキルシクロア

ルキル基には、メチルシクロペンチル基、ジメチルシクロペンチル基(すべての 置換異性体を含む)、エチルシクロペンチル基(すべての置換異性体を含む)、 直鎖または分枝プロピルシクロペンチル基(すべての置換異性体を含む)、エチ ルメチルシクロペンチル基(すべての置換異性体を含む)、トリメチルシクロペ ンチル基(すべての置換異性体を含む)、ジエチルシクロペンチル基(すべての 置換異性体を含む)、エチルジメチルシクロペンチル基(すべての置換異性体を 含む)、直鎖または分枝プロピルメチルシクロペンチル基(すべての置換異性体 を含む)、直鎖または分枝プロピルエチルシクロペンチル基(すべての置換異性 体を含む)、ジー直鎖または分枝プロピルシクロペンチル基(すべての置換異性 体を含む)、直鎖または分枝プロピルエチルメチルシクロペンチル基(すべての 置換異性体を含む)、メチルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、 ジメチルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、エチルシクロヘキシ ル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルシクロヘキシル基 (すべての置換異性体を含む)、エチルメチルシクロヘキシル基(すべての置換 異性体を含む)、トリメチルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、 ジエチルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、エチルジメチルシク ロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルメチルシ クロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルエチル シクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、ジー直鎖または分枝プロピル シクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルエチ ルメチルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、メチルシクロヘプチ ル基(すべての置換異性体を含む)、ジメチルシクロヘプチル基(すべての置換 異性体を含む)、エチルシクロヘプチル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖 または分枝プロピルシクロヘプチル基(すべての置換異性体を含む)、エチルメ チルシクロヘプチル基(すべての置換異性体を含む)、トリメチルシクロヘプチ ル基(すべての置換異性体を含む)、ジエチルシクロヘプチル基(すべての置換 異性体を含む)、エチルジメチルシクロヘプチル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルメチルシクロヘプチル基(すべての置換異性体を含 む)、直鎖または分枝プロピルエチルシクロヘプチル基(すべての置換異性体を

含む)、ジー直鎖または分枝プロピルシクロヘプチル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルエチルメチルシクロヘプチル基(すべての置換 異性体を含む)などが挙げられる。

 R^1 として好ましいアリール基としては、フェニル基、ナフチル基などが包含 され、同じく好ましいアルキルアリール基には、トリル基(すべての置換異性体 を含む)、キシリル基(すべての置換異性体を含む)、エチルフェニル基(すべ ての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルフェニル基(すべての置換異 性体を含む)、エチルメチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、トリメ チルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝ブチルフェニル (すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルメチルフェニル基 基 (すべての置換異性体を含む)、ジエチルフェニル基(すべての置換異性体を含 む)、エチルジメチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、テトラメチル フェニル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝ペンチルフェニル基 (すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝へキシルフェニル基(すべての 置換異性体を含む)、直鎖または分枝ヘプチルフェニル基(すべての置換異性体 を含む)、直鎖または分枝オクチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、 直鎖または分枝ノニルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分 枝デシルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝ウンデシル フェニル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝ドデシルフェニル基 (すべての置換異性体を含む)などが包含され、同じく好ましいアリールアルキ ル基には、ベンジル基、メチルベンジル基(すべての置換異性体を含む)、ジメ チルベンジル基(すべての置換異性体を含む)、フェネチル基、メチルフェネチ ル基(すべての置換異性体を含む)、ジメチルフェネチル基(すべての置換異性 体を含む)などが挙げられる。

これらの中でも、 R^1 が水素である場合、炭素数 $1\sim 1$ 2 の直鎖状もしくは分枝状のアルキル基である場合、炭素数 $6\sim 1$ 8 のアリール基である場合またはアルキルアリール基である場合がより好ましく、特に、水素、炭素数 $1\sim 6$ の直鎖状もしくは分枝状のアルキル基である場合、フェニル基である場合または炭素数 $7\sim 1$ 5 の直鎖もしくは分枝アルキルアリール基である場合が一層好ましく、水

素である場合が最も好ましい。

[0006]

一般式(1)における R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 は、それぞれ個別に水素、炭素数 $1\sim 1$ 6の炭化水素基または一般式(2)で表される基を示す。

ここでいう炭素数 $1\sim1$ 6の炭化水素基には、炭素数 $1\sim1$ 6の直鎖状または分枝状のアルキル基、炭素数 $2\sim1$ 6の直鎖状または分枝状のアルケニル基、炭素数 $5\sim1$ 6のシクロアルキル基またはアルキルシクロアルキル基、炭素数 $6\sim1$ 6のアリール基またはアルキルアリール基、炭素数 $7\sim1$ 6のアリールアルキル基などが包含される。

好ましいアルキル基としては、メチル基、エチル基、nープロピル基、イソプロピル基、nーブチル基、イソブチル基、secーブチル基、tertーブチル基、直鎖または分枝ペンチル基、直鎖または分枝ペキシル基、直鎖または分枝ペンチル基、直鎖または分枝ノニル基、直鎖または分枝アシル基、直鎖または分枝アジル基、直鎖または分枝アジル基、直鎖または分枝ペンタ校デシル基、直鎖または分枝ペンテジル基、直鎖または分枝ペンタデシル基、直鎖または分枝ペキサデシル基などが挙げられ、同じく好ましいアルケニル基としては、ビニル基、プロペニル基、イソプロペニル基、直鎖または分枝ペンテニル基、直鎖または分枝ペンテニル基、直鎖または分枝ペンテニル基、直鎖または分枝ペンテニル基、直鎖または分枝ペンテニル基、直鎖または分枝ペンデニル基、直鎖または分枝ペンデモル基、直鎖または分枝ペンデセニル基、直鎖または分枝アシデセニル基、直鎖または分枝パンタデセニル基、直鎖または分枝ペンタデセニル基などが挙げられる。

同様にして、好ましいシクロアルキル基としては、シクロペンチル基、シクロ へキシル基、シクロヘプチル基などが挙げられ、アルキルシクロアルキル基としては、メチルシクロペンチル基(すべての置換異性体を含む)、ジメチルシクロペンチル基(すべての置換異性体を含む)、エチルシクロペンチル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルシクロペンチル基(すべての置換異性体を含む)、エチルメチルシクロペンチル基(すべての置換異性体を含む)、エチルメチルシクロペンチル基(すべての置換異性体を含む)

、トリメチルシクロペンチル基(すべての置換異性体を含む)、ジエチルシクロ ペンチル基(すべての置換異性体を含む)、エチルジメチルシクロペンチル基 (すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルメチルシクロペンチル 基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルエチルシクロペンチ ル基(すべての置換異性体を含む)、メチルシクロヘキシル基(すべての置換異 性体を含む)、ジメチルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、エチ ルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルシ クロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、エチルメチルシクロヘキシル基 (すべての置換異性体を含む)、トリメチルシクロヘキシル基(すべての置換異 性体を含む)、ジエチルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、エチ ルジメチルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プ ロピルメチルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、メチルシクロヘ プチル基(すべての置換異性体を含む)、ジメチルシクロヘプチル基(すべての 置換異性体を含む)、エチルシクロヘプチル基(すべての置換異性体を含む)、 直鎖または分枝プロピルシクロヘプチル基(すべての置換異件体を含む)、エチ ルメチルシクロヘプチル基(すべての置換異性体を含む)、トリメチルシクロヘ プチル基(すべての置換異性体を含む)などが挙げられる。

ルフェネチル基(すべての置換異性体を含む)、ジメチルフェネチル基(すべての置換異性体を含む)などが挙げられる。

上記した炭素数 1~16の炭化水素基の中でも、炭素数 1~8の直鎖または分枝状のアルキル基がより一層好ましく、特に炭素数 1~3の直鎖または分枝状のアルキル基が最も好ましい。

ただし、窒素原子を含有する極性基の極性が大きい場合には、炭素数 8 ~ 1 6 の炭化水素基を全分子中に1個ないし数個含有することが好ましい。

[0007]

一般式(1)における R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 は、一般式(2)で表される基であってもよいが、その一般式(2)において、 R^7 および R^8 はそれぞれ個別に、水素、炭素数 $1\sim 1$ 0 の炭化水素基または炭素数 $2\sim 1$ 0 のアルコキシアルキル基を示す。ここでいう炭素数 $1\sim 1$ 0 の炭化水素基には、炭素数 $1\sim 1$ 0 の直鎖状または分枝状のアルキル基、炭素数 $2\sim 1$ 0 の直鎖状または分枝状のアルケニル基、炭素数 $5\sim 1$ 0 のシクロアルキル基またはアルキルシクロアルキル基、炭素数 $6\sim 1$ 0 のアリール基またはアルキルアリール基、炭素数 $7\sim 1$ 0 のアリールアルキル基などが包含される。

好ましいアルキル基としては、メチル基、エチル基、nープロピル基、イソプロピル基、nーブチル基、イソブチル基、secーブチル基、tertーブチル基、直鎖または分枝ペンチル基、直鎖または分枝ペキシル基、直鎖または分枝ペプチル基、直鎖または分枝パンチル基、直鎖または分枝ノニル基、直鎖または分枝デシル基などが挙げられ、同じく好ましいアルケニル基としては、ビニル基、プロペニル基、イソプロペニル基、直鎖または分枝ブテニル基、ブタジエニル基、直鎖または分枝ペンテニル基、直鎖または分枝ペキセニル基、直鎖または分枝ペンテニル基、直鎖または分枝ペキセニル基、直鎖または分枝ペシテニル基、直鎖または分枝パネニル基、直鎖または分枝パネニル基、直鎖または分枝パネニル基、直鎖または分枝パネニル基、直鎖または分枝パネニル基、直鎖または分枝パネニル基、直鎖または分枝パネニル基、直鎖または分枝パネニル基、直鎖または分枝パネニル基、直鎖または分枝パネニル基、直鎖または分枝デセニル基などが挙げられる。

同様にして、好ましいシクロアルキル基としては、シクロペンチル基、シクロ ヘキシル基、シクロヘプチル基などが挙げられ、アルキルシクロアルキル基とし ては、メチルシクロペンチル基(すべての置換異性体を含む)、ジメチルシクロペンチル基(すべての置換異性体を含む)、エチルシクロペンチル基(すべての

置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルシクロペンチル基(すべての置換 異性体を含む)、エチルメチルシクロペンチル基(すべての置換異性体を含む) 、トリメチルシクロペンチル基(すべての置換異性体を含む)、ジエチルシクロ ペンチル基(すべての置換異性体を含む)、エチルジメチルシクロペンチル基 (すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルメチルシクロペンチル 基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルエチルシクロペンチ ル基(すべての置換異性体を含む)、メチルシクロヘキシル基(すべての置換異 性体を含む)、ジメチルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、エチ ルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルシ クロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、エチルメチルシクロヘキシル基 (すべての置換異性体を含む)、トリメチルシクロヘキシル基(すべての置換異 性体を含む)、ジエチルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、エチ ルジメチルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プ ロピルメチルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、メチルシクロヘ プチル基(すべての置換異性体を含む)、ジメチルシクロヘプチル基(すべての 置換異性体を含む)、エチルシクロヘプチル基(すべての置換異性体を含む)、 直鎖または分枝プロピルシクロヘプチル基(すべての置換異性体を含む)、エチ ルメチルシクロヘプチル基(すべての置換異性体を含む)、トリメチルシクロヘ プチル基(すべての置換異性体を含む)などが挙げられる。

また、好ましいアリール基としては、フェニル基、ナフチル基などが挙げられ、好ましいアルキルアリール基としては、トリル基(すべての置換異性体を含む)、エチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、エチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、トリメチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、トリメチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝ブチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝ブロピルメチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルメチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、エチルジメチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、エチルジメチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、テトラメチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、テトラメチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)などが挙げられる。そして、好ましいアリール

アルキル基としては、ベンジル基、メチルベンジル基(すべての置換異性体を含む)、ジメチルベンジル基(すべての置換異性体を含む)、フェネチル基、メチルフェネチル基(すべての置換異性体を含む)、ジメチルフェネチル基(すべての置換異性体を含む)などが挙げられる。

また、上記した炭素数2~10のアルコキシアルキル基としては、例えば、メ トキシメチル基、エトキシメチル基、n-プロポキシメチル基、イソプロポキシ メチル基、n-ブトキシメチル基、イソブトキシメチル基、sec-ブトキシメ チル基、tert-ブトキシメチル基、ペントキシメチル基(すべての異性体を 含む)、ヘキソキシメチル基(すべての異性体を含む)、ヘプトキシメチル基(すべての異性体を含む)、オクトキシメチル基(すべての異性体を含む)、ノニ ロキシメチル基(すべての異性体を含む)、メトキシエチル基(すべての異性体 を含む)、エトキシエチル基(すべての異性体を含む)、プロポキシエチル基(すべての異性体を含む)、ブトキシエチル基(すべての異性体を含む)、ペント キシエチル基(すべての異性体を含む)、ヘキソキシエチル基(すべての異性体 を含む)、ヘプトキシエチル基(すべての異性体を含む)、オクトキシエチル基 (すべての異性体を含む)、メトキシプロピル基(すべての異性体を含む)、エ トキシプロピル基(すべての異性体を含む)、プロポキシプロピル基(すべての 異性体を含む)、ブトキシプロピル基(すべての異性体を含む)、ペントキシプ ロピル基(すべての異性体を含む)、ヘキソキシプロピル基(すべての異性体を 含む)、ヘプトキシプロピル基(すべての異性体を含む)、メトキシブチル基(すべての異性体を含む)、エトキシブチル基(すべての異性体を含む)、プロポ キシブチル基(すべての異性体を含む)、ブトキシブチル基(すべての異性体を 含む)、ペントキシブチル基(すべての異性体を含む)、ヘキソキシブチル基(すべての異性体を含む)、メトキシペンチル基(すべての異性体を含む)、エト キシペンチル基(すべての異性体を含む)、プロポキシペンチル基(すべての異 性体を含む)、ブトキシペンチル基(すべての異性体を含む)、ペントキシペン チル基(すべての異性体を含む)、メトキシヘキシル基(すべての異性体を含む)、エトキシヘキシル基(すべての異性体を含む)、プロポキシヘキシル基(す べての異性体を含む)、ブトキシヘキシル基(すべての異性体を含む)、メトキ

シヘプチル基(すべての異性体を含む)、エトキシヘプチル基(すべての異性体を含む)、プロポキシヘプチル基(すべての異性体を含む)、メトキシオクチル基 (すべての異性体を含む)、エトキシオクチル基(すべての異性体を含む)、メトキシノニル基(すべての異性体を含む)などが挙げられる。

[0008]

一般式(2)における R^7 および R^8 は共に、または個別に水素、炭素数 $1\sim6$ のアルキル基または炭素数 $2\sim6$ のアルコキシアルキル基であることが好ましく、特に水素または炭素数 $1\sim3$ のアルキル基であることがより一層好ましい。

一般式(2)における R^9 は炭素数 $2\sim6$ のアルキレン基を示すか、またはア ルコキシアルキレン基を置換基として有する総炭素数4~10のアルキレン基を 示す。 ここでいう炭素数2~6のアルキレン基としては、例えば、エチレン基 、プロピレン基(1-メチルエチレン基、2-メチルエチレン基)、トリメチレ ン基、ブチレン基(1-エチルエチレン基、2-エチルエチレン基)、1,2-ジメチルエチレン基、2,2-ジメチルエチレン基、1-メチルトリメチレン基 、2-メチルトリメチレン基、3-メチルトリメチレン基、テトラメチレン基、 ペンチレン基(1-ブチルエチレン基、2-ブチルエチレン基)、1-エチルー 1-メチルエチレン基、1-エチル-2-メチルエチレン基、1,1,2-トリ メチルエチレン基、1,2,2ートリメチルエチレン基、1-エチルトリメチレ ン基、2-エチルトリメチレン基、3-エチルトリメチレン基、1,1-ジメチ ルトリメチレン基、1,2-ジメチルトリメチレン基、1,3-ジメチルトリメ チレン基、2,3-ジメチルトリメチレン基、3,3-ジメチルトリメチレン基 、1-メチルテトラメチレン基、2-メチルテトラメチレン基、3-メチルテト ラメチレン基、4-メチルテトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキシレン基 (1-ブチルエチレン基、2-ブチルエチレン基)、1-メチル-1-プロピル エチレン基、1-メチル-2-プロピルエチレン基、2-メチル-2-プロピル エチレン基、1,1-ジエチルエチレン基、1,2-ジエチルエチレン基、2, 2-ジエチルエチレン基、1-エチルー1, 2-ジメチルエチレン基、1-エチ N-2, 2-3メチルエチレン基、2-xチルー1, 1-3メチルエチレン基、 2-エチル-1, 2-ジメチルエチレン基、1, 1, 2, 2-テトラメチルエチ

レン基、1-プロピルトリメチレン基、2-プロピルトリメチレン基、3-プロ ピルトリメチレン基、1-エチル-1-メチルトリメチレン基、1-エチル-2 -メチルトリメチレン基、1-エチル-3-メチルトリメチレン基、2-エチル -1-メチルトリメチレン基、2-エチル-2-メチルトリメチレン基、2-エ チルー3ーメチルトリメチレン基、3ーエチルー1ーメチルトリメチレン基、3 -エチル-2-メチルトリメチレン基、3-エチル-3-メチルトリメチレン基 、 1, 1, 2 - トリメチルトリメチレン基、 1, 1, 3 - トリメチルトリメチレ ン基、1,2,2ートリメチルトリメチレン基、1,2,3ートリメチルトリメ チレン基、1,3,3-トリメチ ルトリメチレン基、2,3-トリメチル トリメチレン基、2、3、3-トリメチルトリメチレン基、1-エチルテトラメ チレン基、2-エチルテトラメチレン基、3-エチルテトラメチレン基、4-エ チルテトラメチレン基、1,1-ジメチルテトラメチレン基、1,2-ジメチル テトラメチレン基、1,3-ジメチルテトラメチレン基、1,4-ジメチルテト ラメチレン基、2,2-ジメチルテトラメチレン基、2,3-ジメチルテトラメ チレン基、2,4-ジメチルテトラメチレン基、3,3-ジメチルテトラメチレ ン基、3,4ージメチルテトラメチレン基、4,4ージメチルテトラメチレン基 、1-メチルペンタメチレン基、2-メチルペンタメチレン基、3-メチルペン タメチレン基、4-メチルペンタメチレン基、5-メチルペンタメチレン基、へ キサメチレン基などが挙げられる。

また、 R^9 についていうアルコキシアルキレン基を置換基として含有する総炭素数 $4 \sim 1$ 0 のアルキレン基としては、例えば、1-(メトキシメチル)エチレン基、2-(メトキシメチル)エチレン基、1-(メトキシエチル)エチレン基、2-(メトキシエチル)エチレン基、1-(エトキシメチル)エチレン基、2-(エトキシメチル)エチレン基、1-(エトキシメチル)エチレン基、1-(エトキシメチル)エチレン基、1-(エトキシメチル)エチレン基、1-(ストキシメチル)エチレン基、1-(ストキシメチル)エチレン基、1-(ストキシメチル)エチレン基、1-(ストキシエチル)エチレン基、1-(ストキシエチル)エチレン基、1-(ストキシエチル)エチレン基、1-(ストキシエチル)エチレン基、1-(ストキシスチル)エチレン基、1-(ストキシスチル)

メチル)エチレン基、1ーメチルー2ーメトキシメチルエチレン基、1ーメトキシメチルー2ーメチルエチレン基、1ーエチルー2ーメトキシメチルエチレン基、1ーメトキシメチルエチレン基、1ーメチルー2ーエトキシメチルエチレン基、1ーエトキシメチルエチレン基、1ーエチルー2ーエトキシメチルエチレン基、1ーエトキシメチルー2ーエチルエチレン基、1ーエトキシメチルー2ーエチルエチレン基、1ーメトキシエチルエチレン基、1ーメトキシエチルエチレン基、1ーエチルー2ーメトキシエチルエチレン基、1ーメトキシエチルー2ーエチルエチレン基などで例示される総炭素数2~8のアルコキシアルキレン基置換エチレン基が好ましい例として挙げられる。

そして、一般式(2)の R^9 は、炭素数 $2\sim 4$ のアルキレン基であるか、あるいは総炭素数 $2\sim 6$ アルコキシアルキレン基置換エチレン基であることが特に好ましい。

[0009]

一般式(2)における R^{10} は水素または炭素数 $1\sim30$ の炭化水素基を示すが、 R^{10} は水素であるか、あるいは R^{1} について先に説明した炭素数 $1\sim24$ の直鎖状または分枝状のアルキル基、炭素数 $2\sim24$ の直鎖状または分枝状のアルケニル基、炭素数 $5\sim13$ のシクロアルキル基またはアルキルシクロアルキル基、炭素数 $6\sim18$ のアリール基またはアルキルアリール基、炭素数 $7\sim19$ のアリールアルキル基のいずれかであることが好ましい。そして、 R^{10} は炭素数 $1\sim24$ 0アルキル基であることがより一層好ましく、炭素数 $1\sim12$ 0アルキル基であることが特に好ましい。

一般式(2)におけるfは0~50の範囲の任意の整数であって差し支えないが、好ましくは0~30、より好ましくは0~20の整数である。

[0010]

従って、一般式 (2) で表される基は、 R^7 および R^8 がそれぞれ個別に水素、 炭素数 $1\sim 6$ のアルキル基または炭素数 $2\sim 6$ のアルコキシアルキル基であり、 R^9 が炭素数 $2\sim 6$ のアルキレン基または総炭素数 $2\sim 8$ のアルコキシアルキレ ン基置換エチレン基であり、 R^{10} が炭素数 $1\sim 2$ 4 のアルキル基であり、かつ f が $0\sim 3$ 0 の整数であるものが好ましい。以下、このような基(一般式 (2) で 表される基を指す)を、便宜上、「好ましい置換基群(2a)」と呼ぶ。そして、R 7 および R^8 がそれぞれ個別に水素または炭素数 $1\sim3$ のアルキル基であり、 R^9 が炭素数 $2\sim4$ のアルキレン基であり、 R^{10} が炭素数 $1\sim1$ 2のアルキル基であり、かつ f が $0\sim2$ 0の整数であるものがより一層好ましい。以下、このような基(一般式(2)で表される基を指す)を、便宜上、「より好ましい置換基群(2b)」と呼ぶ。

本発明の含窒素化合物は、一般式(1)における R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 が、水素または炭素数 $1\sim 8$ のアルキル基または上記した「好ましい置換基群(2a)」であることが好ましい。さらに、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 が、水素または炭素数 $1\sim 3$ のアルキル基または上記した「より好ましい置換基群(2b)」であることがより好ましい。

また、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 のうちの少なくとも1つが、一般式(2)で表される基であることが好ましく、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 の1つが一般式(2)で表される基であり、他の3つがそれぞれ個別に水素または炭素数 $1\sim 1$ 6の炭化水素基であることがより好ましい。

[0011]

一般式(1)における R^6 は、炭素数 $1\sim10$ の炭化水素基を示すが、その炭化水素基としては、 R^7 および R^8 について先に説明した炭素数 $1\sim10$ の直鎖状または分枝状のアルキル基、炭素数 $2\sim10$ の直鎖状または分枝状のアルケニル基、炭素数 $5\sim10$ のシクロアルキル基またはアルキルシクロアルキル基、炭素数 $6\sim10$ のアリール基またはアルキルアリール基、炭素数 $7\sim10$ のアリールアルキル基などが包含される。

そして、 R^6 としては、炭素数 $1 \sim 6$ のアルキレン基が好ましく、さらには炭素数 $3 \sim 6$ のアルキレン基が好ましく、具体的には、トリメチレン基、1-メチルトリメチレン基、2-メチルトリメチレン基、3-メチルトリメチレン基、テトラメチレン基、1-メチルテトラメチレン基、2-メチルテトラメチレン基、3-メチルテトラメチレン基、4-メチルテトラメチレン基、3-メチルペンタメチレン基、3-メチルペンタメチレン基、3-メチルペンタメチレン基、3-メチルペンタメチレン基、3-メチルペンタメチレン基、3-メチルペンタメチレン基、3-

キサメチレン基などが好ましい。

[0012]

一般式(1)におけるZは、下記A群中から選ばれる基を示す。

A群

A1: -O-CO-

A2:-CO-

 $A3: -0-C0-R^{11}-$

(R¹¹は炭素数1~6のアルキレン基を示す)

 $A4: -O-CO-O-R^{12}-$

(R¹²は炭素数1~6のアルキレン基を示す)

 $A5: -CO-O-R^{13}-$

 $(R^{13}$ は炭素数1~6のアルキレン基を示す)

上記A群の R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} は炭素数 $1\sim6$ のアルキレン基を示すが、そのア ルキレン基としては、例えば、メチレン基、エチレン基、プロピレン基 (1-メ チルエチレン基、2-メチルエチレン基)、トリメチレン基、ブチレン基(1-エチルエチレン基、2-エチルエチレン基)、1,2-ジメチルエチレン基、2 , 2-ジメチルエチレン基、1-メチルトリメチレン基、2-メチルトリメチレ ン基、3-メチルトリメチレン基、テトラメチレン基、ペンチレン基(1-ブチ ルエチレン基、2-ブチルエチレン基)、1-エチル-1-メチルエチレン基、 1-エチル-2-メチルエチレン基、1,1,2-トリメチルエチレン基、1, 2, 2-トリメチルエチレン基、1-エチルトリメチレン基、2-エチルトリメ チレン基、3-エチルトリメチレン基、1,1-ジメチルトリメチレン基、1, 2-ジメチルトリメチレン基、1,3-ジメチルトリメチレン基、2,3-ジメ チルトリメチレン基、3,3-ジメチルトリメチレン基、1-メチルテトラメチ レン基、2-メチルテトラメチレン基、3-メチルテトラメチレン基、4-メチ ルテトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキシレン基(1-ブチルエチレン基 、2-ブチルエチレン基)、1-メチル-1-プロピルエチレン基、1-メチル -2-プロピルエチレン基、2-メチル-2-プロピルエチレン基、1,1-ジ エチルエチレン基、1,2-ジエチルエチレン基、2,2-ジエチルエチレン基

、1-エチル-1,2-ジメチルエチレン基、1-エチル-2,2-ジメチルエ チレン基、2-エチル-1,1-ジメチルエチレン基、2-エチル-1,2-ジ メチルエチレン基、1,1,2,2-テトラメチルエチレン基、1-プロピルト リメチレン基、2-プロピルトリメチレン基、3-プロピルトリメチレン基、1 -エチル-1-メチルトリメチレン基、1-エチル-2-メチルトリメチレン基 、1-エチル-3-メチルトリメチレン基、2-エチル-1-メチルトリメチレ ン基、2-エチル-2-メチルトリメチレン基、2-エチル-3-メチルトリメ チレン基、3-エチル-1-メチルトリメチレン基、3-エチル-2-メチルト リメチレン基、3-エチル-3-メチルトリメチレン基、1,1,2-トリメチ ルトリメチレン基、1, 1, 3-トリメチルトリメチレン基、1, 2, 2-トリ メチルトリメチレン基、1,2,3-トリメチルトリメチレン基、1,3,3-トリメチルトリメチレン基、2, 2, 3-トリメチルトリメチレン基、2, 3, 3-トリメチルトリメチレン基、1-エチルテトラメチレン基、2-エチルテト ラメチレン基、3-エチルテトラメチレン基、4-エチルテトラメチレン基、1 , 1-ジメチルテトラメチレン基、1, 2-ジメチルテトラメチレン基、1, 3 - ジメチルテトラメチレン基、1,4-ジメチルテトラメチレン基、2,2-ジ メチルテトラメチレン基、2,3-ジメチルテトラメチレン基、2,4-ジメチ ルテトラメチレン基、3,3-ジメチルテトラメチレン基、3,4-ジメチルテ トラメチレン基、4,4ージメチルテトラメチレン基、1ーメチルペンタメチレ ン基、2-メチルペンタメチレン基、3-メチルペンタメチレン基、4-メチル ペンタメチレン基、5-メチルペンタメチレン基、ヘキサメチレン基などが挙げ られる。

これらの中でも R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} としては、炭素数 $1\sim4$ のアルキレン基が好ましく、具体的には、メチレン基、エチレン基、プロピレン基(1-メチルエチレン基、2-メチルエチレン基)、トリメチレン基、ブチレン基(1-エチルエチレン基、2-エチルエチレン基)、1, 2-ジメチルエチレン基、2, 2-ジメチルエチレン基、1-メチルトリメチレン基、2-メチルトリメチレン基、3-メチルトリメチレン基、テトラメチレン基などが好ましい。さらに R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} としては、炭素数 $1\sim3$ のアルキレン基、具体的にはメチレン基、エチレ

ン基、プロピレン基(1 -メチルエチレン基、2 -メチルエチレン基)またはトリメチレン基が最も好ましい。

一般式(1)のZは上記A群中でも、A1, A2またはA4であることが好ましい。

[0013]

本発明の含窒素化合物を表す一般式(1)において、aは $1\sim200$ 、好ましくは $2\sim100$ の整数である。

また、一般式(1)においてbおよびcはそれぞれ個別に0または1である。 すなわち、bが0、cが0の場合は下記一般式(6)で表される化合物を表し、bが0、cが1の場合は下記一般式(7)で表される化合物を表し、bが1、 cが0の場合は下記一般式(8)で表される化合物を表し、bが1、cが1の場合は下記一般式(9)で表される化合物を表す。

【化9】

$$\begin{bmatrix} R^1 + \begin{bmatrix} O - C - C \\ C - C \\ R^4 \end{bmatrix} & \begin{bmatrix} R^5 \end{bmatrix}_a \end{bmatrix}_d N + \begin{bmatrix} X \end{bmatrix}_e$$
 (6)

(一般式(6)における R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 およびXは、一般式(1)における R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 およびXと同一の基を示し、a、dおよびeも一般式(1)におけるa、dおよびeと同一の整数である。)

(一般式(7)における R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 およびX、Zは、一般式(1)における R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 およびX、Zと同一の基を示し、a、dおよびeも一般式(1)におけるa、dおよびeと同一の整数である。)

(一般式(8)における R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 およびXは、一般式(1)における R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 およびXと同一の基を示し、a、dおよびeも一般式(1)におけるa、dおよびeと同一の整数である。)

(一般式(9)における R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 およびX、Zは、一般式(1)における R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 およびX、Zと同一の基を示し、a、d およびe も一般式(1)におけるa、d およびe と同一の整数である。)一般式(1)におけるc は、上記したとおり、0または1の何れであってもよいが、c=0である場合が好ましい。

一般式(1) におけるdは $1\sim3$ 、好ましくは $1\sim2$ 、eは $0\sim2$ 、好ましくは $1\sim2$ の整数であって、かつd+eは3であり、最も好ましくはd=1かつe=2である。

なお、一般式(1)で表される含窒素化合物において、dが2の場合は以下の一般式(10)で表される基を1分子中に2個有するものであるが、この場合、それらの基は同一の構造であっても良く、また異なる構造であっても良い。 【化10】

$$R^{1} = \begin{bmatrix} 0 - C - C & R^{2} & R^{3} \\ C - C & C & A^{4} & A^{5} \end{bmatrix}_{a} = \begin{bmatrix} 0 - R^{6} \\ D & C \end{bmatrix}_{b} = \begin{bmatrix} 2 & A^{2} & A^{2} \\ C & C & A^{4} & A^{5} \end{bmatrix}_{a}$$
(10)

(一般式(1 0)における R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 およびZは、一般式(1)における R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 およびZと同一の基を示し、a、bおよびcも、一般式(1)におけるa、bおよびcと同一の整数である。)

[0014]

本発明の含窒素化合物を表す一般式(1)において、Xは下記のB群の中から

選ばれる基を示す。

B群

B1:水素

B2:炭素数1~30の炭化水素基

B3:下記一般式(3)で表されるアルカノール基 - R¹⁴-OH (3)

 $(-般式(3) において、<math>R^{14}$ は炭素数 $1\sim6$ のアルキレン基を示す。)

B4:下記一般式(4)で表される含窒素基

【化11】

$$= R^{15} - N - R^{17}$$
 (4)

(一般式(4)において、 R^{15} は炭素数 $2\sim 6$ のアルキレン基を示し、 R^{16} は水素、炭素数 $1\sim 4$ のアルキル基または上記一般式(3)で表される基を示し、 R^{17} は水素、炭素数 $1\sim 3$ 0の炭化水素基または上記一般式(3)で表される基を示し、gは $1\sim 5$ の整数を示す。)

B5:下記一般式(5)で表される基

【化12】

$$\begin{array}{c}
R^{19} R^{20} \\
C - C \\
Y \\
C - C \\
R^{21} R^{22}
\end{array}$$
(5)

(一般式(5)において、 R^{18} は炭素数 $2\sim 6$ のアルキレン基を示し、 R^{19} 、 R^{20} 、 R^{21} および R^{22} はそれぞれ別個に水素、炭素数 $1\sim 1$ 0の炭化水素基または水酸基を示し、Yはメチレン基、炭素数 $1\sim 1$ 0の炭化水素基もしくは水酸基で置換されたメチレン基、イミノ基、炭素数 $1\sim 1$ 0の炭化水素基もしくは水酸基で置換されたイミノ基または酸素を示し、 R^{19} 0の炭化水素基もしくは水酸基で置換されたイミノ基または酸素を示し、 R^{19} 0の炭化水素基もしくは水酸基で置換されたイミノ基または酸素を示し、 R^{19} 0の炭化水素基もしくは水酸素を置換されたイミノ基または酸素を示し、 R^{19} 0の炭化水素基もしくは水酸素を置換されたイミノ基または酸素を示し、 R^{19} 0の炭化水素基もしくは水酸

)は、一般式(1)中のN(窒素)に該当する)

[0015]

上記B2の炭素数 $1\sim30$ の炭化水素基として好ましいものには、 R^1 について先に説明した炭素数 $1\sim24$ の直鎖状または分枝状のアルキル基、炭素数 $2\sim24$ の直鎖状または分枝状のアルケニル基、炭素数 $5\sim13$ のシクロアルキル基またはアルキルシクロアルキル基、炭素数 $6\sim18$ のアリール基またはアルキルアリール基、炭素数 $7\sim19$ のアリールアルキル基などが包含される。

B 2 としては、炭素数 $1 \sim 1$ 2 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、または炭素数 $6 \sim 1$ 2 のアリール基もしくはアリールアルキル基がより好ましく、特に炭素数 $1 \sim 6$ の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、フェニル基または炭素数 $7 \sim 9$ のアリールアルキル基が最も好ましい。

[0016]

上記B 3のアルカノール基を表す一般式(3)において、 R^{14} は炭素数 $1 \sim 6$ のアルキレン基を示すが、このようなアルキレン基としては、具体的には R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} として先に説明した基が挙げられる。これらの中でも R^{14} としては、炭素数 $1 \sim 4$ のアルキレン基が好ましく、具体的には、メチレン基、エチレン基、プロピレン基(1-メチルエチレン基、2-メチルエチレン基)、トリメチレン基、ブチレン基(1-エチルエチレン基、2-エチルエチレン基)、1, 2-ジメチルエチレン基、2, 2-ジメチルエチレン基、1-メチルトリメチレン基、2-メチルトリメチレン基、2-メチルトリメチレン基などが好ましい。さらに R^{14} としては、炭素数 $1 \sim 3$ のアルキレン基、2-メチルエチレン基、メチレン基、プロピレン基(1-メチルエチレン基、2-メチルエチレン基、1-

[0017]

上記B4の含窒素基を表す一般式(4)において、 R^{15} は、炭素数 $2\sim6$ のアルキレン基を示すが、このようなアルキレン基としては、具体的には R^9 として 先に説明した基が挙げられる。

これらの中でも R^{15} としては、炭素数 $2\sim 4$ のアルキレン基が好ましく、具体的には、エチレン基、プロピレン基(1-メチルエチレン基、 2-メチルエチレ

ン基)、トリメチレン基、ブチレン基(1-エチルエチレン基、2-エチルエチレン基)、1,2-ジメチルエチレン基、2,2-ジメチルエチレン基、1-メチルトリメチレン基、3-メチルトリメチレン基、テトラメチレン基などが好ましく、炭素数2~3のアルキレン基、具体的には、エチレン基、プロピレン基(1-メチルエチレン基、2-メチルエチレン基)、トリメチレン基がより好ましい。

[0018]

一般式(4)における R^{16} は、水素、炭素数 $1\sim 4$ のアルキル基または上記一般式(3)で表される基を示す。炭素数 $1\sim 4$ のアルキル基としては、具体的には例えば、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基などが挙げられるが、好ましくは炭素数 $1\sim 3$ のアルキル基が挙げられ、メチル基またはエチル基であることがより好ましい。

一般式(4)における R^{17} は、水素、炭素数 $1\sim30$ の炭化水素基または上記一般式(3)で表される基を示している。ここでいう炭素数 $1\sim30$ の炭化水素基として好ましいものには、 R^1 について先に説明した炭素数 $1\sim24$ の直鎖状または分枝状のアルキル基、炭素数 $2\sim24$ の直鎖状または分枝状のアルケニル基、炭素数 $5\sim13$ のシクロアルキル基またはアルキルシクロアルキル基、炭素数 $5\sim13$ のシクロアルキルアリール基、炭素数 $7\sim19$ のアリールアルキル基などが包含される。 R^{17} としては水素、炭素数 $1\sim12$ の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、炭素数 $6\sim12$ のアリール基もしくはアリールアルキル基、または一般式(3)で表される基がより好ましく、特に水素、炭素数 $1\sim6$ の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、フェニル基、炭素数 $1\sim6$ の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、フェニル基、炭素数 $1\sim6$ 0の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、フェニル基、炭素数 $1\sim6$ 0の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、フェニル基、炭素数 $1\sim6$ 0の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、フェニル基、炭素数 $1\sim6$ 0の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、フェニル基、炭素数 $1\sim6$ 00で表される基が最も好ましい。

一般式(4)におけるgは $1\sim5$ 、好ましくは $1\sim4$ 、より好ましくは $1\sim3$ の整数である。

また、一般式(4)で表される基に含まれるところの下記の一般式(11)で表される基は、下記の一般式(12)で表される構成単位を $1\sim5$ 個、好ましくは $1\sim4$ 個、より好ましくは $1\sim3$ 個有している。

【化13】

$$-\begin{bmatrix} R^{15} - N \\ R^{16} \end{bmatrix}_{g}$$
 (11)

(一般式($1\ 1$)および($1\ 2$)における R^{15} 、 R^{16} およびgは、一般式(4)における R^{15} 、 R^{16} およびgと同一の基、整数を示す。)

従って、一般式(1 1)で表される基は、一般式(1 2)で表される構成単位 が以下のように結合にして得られた基を表す。

- ①一般式(12)で表される1種の構成単位を結合させたもの
- ②一般式(12)に含まれる2種以上の異なる構成単位を、ランダムに結合させたもの、交互に結合させたものまたはブロック結合させたもの

B 4 に類別される一般式(4)で表される含窒素基としては、 R^{15} が炭素数 2 ~4 のアルキレン基であり、 R^{16} が水素、炭素数 1 ~3 のアルキル基または一般式(3)で表される基であり、 R^{17} が水素、炭素数 1 ~1 2 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、炭素数 6 ~1 2 のアリール基もしくはアルキルアリール基または一般式(3)で表される基であり、かつgが 1 ~4 である場合が好ましく、 R^{15} がエチレン基、プロピレン基(1 -メチルエチレン基、2 -メチルエチレン基)またはトリメチレン基であり、 R^{16} が水素、メチル基、エチル基または一般式(3)で表される基であり、 R^{17} が水素、炭素数 1 ~6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、フェニル基、炭素数 7 ~9 のアルキルアリール基または一般式(3)で表される基であり、かつgが 1 ~3 である場合が最も好ましい。

[0019]

上記B 5 に該当する一般式(5)で表される基において、R 18 は炭素数 2 6 のアルキレン基を示している。ここでいうアルキレン基としては、具体的にはR 15 として先に説明した基と同一の基が挙げられる。これらの中でもR 18 としては、炭素数 2 2 4 のアルキレン基が好ましく、具体的には、エチレン基、プロピレン基(1 1

レン基(1-エチルエチレン基、2-エチルエチレン基)、1,2-ジメチルエチレン基、2,2-ジメチルエチレン基、1-メチルトリメチレン基、2-メチルトリメチレン基、3-メチルトリメチレン基、テトラメチレン基などが好ましく、炭素数2~3のアルキレン基、具体的には、エチレン基、プロピレン基(1-メチルエチレン基、2-メチルエチレン基)またはトリメチレン基がより好ましい。

一般式(5)における R^{19} 、 R^{20} 、 R^{21} および R^{22} は、それぞれ個別に水素、 炭素数 $1\sim 1$ 0 の炭化水素基または水酸基を示している。ここでいう炭素数 $1\sim 1$ 0 の炭化水素基としては、 R^7 および R^8 について先に説明した炭素数 $1\sim 1$ 0 の直鎖状または分枝状のアルキル基、炭素数 $2\sim 1$ 0 の直鎖状または分枝状のアルケニル基、炭素数 $5\sim 1$ 0 のシクロアルキル基またはアルキルシクロアルキル基、炭素数 $6\sim 1$ 0 のアリール基またはアルキルアリール基、炭素数 $7\sim 1$ 0 のアリールアルキル基などが挙げられる。

これらの中でも、 R^{19} 、 R^{20} 、 R^{21} および R^{22} がそれぞれ個別に水素、炭素数 $1\sim 6$ のアルキル基または水酸基で表される基である場合が好ましく、それぞれ 個別に水素、炭素数 $1\sim 3$ のアルキル基または水酸基である場合がより好ましい

一般式(5)におけるYは、メチレン基、炭素数1~10の炭化水素基もしくは水酸基で表される基で置換されたメチレン基、イミノ基、炭素数1~10の炭化水素基もしくは水酸基で置換されたイミノ基または酸素を示している。ここでいう炭素数1~10の炭化水素基としては、R⁷およびR⁸について先に説明した炭素数1~10の直鎖状または分枝状のアルキル基、炭素数2~10の直鎖状または分枝状のアルケニル基、炭素数5~10のシクロアルキル基またはアルキルシクロアルキル基、炭素数6~10のアリール基またはアルキルアリール基、炭素数7~10のアリールアルキル基などが挙げられるが、これらの中でも炭素数1~6のアルキル基が好ましく、炭素数1~3のアルキル基がより好ましい。

これらの中でも、Yとしてはメチレン基、炭素数 $1 \sim 6$ のアルキル基もしくは 水酸基で置換されたメチレン基、イミノ基、炭素数 $1 \sim 6$ のアルキル基もしくは 水酸基で置換されたイミノ基または酸素である場合が好ましく、イミノ基、炭素 数 $1 \sim 3$ のアルキル基もしくは水酸基で置換されたイミノ基または酸素である場合が最も好ましい。

[0020]

一般式 (5) で表される基における h は、一般式 (1) において e=1 の場合は h=1 であり、一般式 (1) において e=2 の場合は h=0 または h=1 である。ただし、e=2 かつ h=0 の場合、一般式 (5) 中の N (窒素)は一般式 (1) 中の N (窒素)でもある。すなわち、e=2 かつ h=0 の場合には、一般式 (13) で表されるように、当該化合物に含まれる N (窒素)は一般式 (5) が示す複素環を構成する一員である。

【化14】

$$R^{\frac{1}{2}} = \begin{bmatrix} R^{2} & R^{3} & R^{20} \\ R^{2} & R^{3} & R^{20} \\ R^{4} & R^{5} & R^{5} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} R^{19} & R^{20} \\ C & C \\ R^{2} & R^{20} \end{bmatrix}$$

$$(13)$$

(一般式(13)における R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 およびZは、一般式(1)における R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 およびZと同一の基を示し、a、b および c は、一般式(1)における a、 b および c と同一の整数であり、 R^{19} 、 R^{20} 、 R^{21} 、 R^{22} および Y は、一般式(5)における R^{19} 、 R^{20} 、 R^{21} 、 R^{22} および Y と同一の基を表す。)

B 5 に類別される一般式(5)で表される基としては、R 18 が炭素数 2 2 のアルキレン基であり、R 19 、R 20 、R 21 および R 22 がそれぞれ個別に水素、炭素数 1 2 のアルキル基または水酸基であり、Y がメチレン基、炭素数 1 2 のアルキル基もしくは水酸基で置換されたメチレン基、イミノ基、炭素数 1 2 のアルキル基もしくは水酸基で置換されたイミノ基または酸素であり、h が 2 2 の 場合は 2 2 は 2 2 が 2 $^{$

び R^{22} がそれぞれ個別に水素、炭素数 $1\sim3$ のアルキル基または水酸基であり、Yがイミノ基、炭素数 $1\sim3$ のアルキル基もしくは水酸基で置換されたイミノ基または酸素であり、hがe=1の場合はh=1であり、e=2の場合はh=0またはh=1(ただしh=0の場合、一般式(5)中のN(窒素)は一般式(1)中のN(窒素)でもある)であるものが最も好ましい。

本発明の含窒素化合物を表す一般式(1)において、Xは上記B1~B5の中から任意に選ぶことができる。また、e=2の場合、すなわち、2個のXが選ばれる場合、その二つは同種であっても異種であっても差し支えない。

XはB1、B3、B4またはB5であることが好ましい。

[0021]

以上、本発明の含窒素化合物を総括的に表す一般式(1)の置換基を個々に説明して来たが、本発明の含窒素化合物として好ましいのは、

一般式(1)における R^1 が水素または炭素数 $1\sim 1$ 2の直鎖状もしくは分枝状のアルキル基であるか、あるいは炭素数 $6\sim 1$ 8のアリール基もしくはアルキルアリール基であり、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 が、水素または炭素数 $1\sim 8$ のアルキル基または一般式(2)で表される基であり、

一般式 (2) では R^7 および R^8 がそれぞれ個別に水素、炭素数 $1\sim 6$ のアルキル基または炭素数 $2\sim 6$ のアルコキシアルキル基であり、 R^9 が炭素数 $1\sim 6$ のアルキレン基または総炭素数 $2\sim 8$ のアルコキシアルキレン基置換エチレン基であり、 R^{10} が炭素数 $1\sim 2$ 4 のアルキル基であり、かつ f が $0\sim 3$ 0 の整数であり、

 R^6 が炭素数 $1 \sim 6$ のアルキレン基であり、

 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} が炭素数 $1 \sim 4$ のアルキレン基であり、

aが $1\sim200$ の整数であって、bおよびcが個別に0または1であり、dが $1\sim2$ の整数であり、eが $1\sim2$ の整数であって、かつd+e=3であり、

ZがA群の中から選ばれる基であり、XがB群の中から選ばれる基であり、B2としては、炭素数 $1\sim1$ 2の直鎖状もしくは分枝状のアルキル基または炭素数 $6\sim1$ 2のアリール基もしくはアリールアルキル基であり、B3に該当する一般式(3)ではR 14 が炭素数 $1\sim4$ のアルキレン基であり、B4 に該当する一般

式(4)では R^{15} が炭素数 $2\sim 4$ のアルキレン基であり、 R^{16} が水素、炭素数 $1\sim 3$ のアルキル基または一般式(3)で表される基であり、 R^{17} が水素、炭素数 $1\sim 1$ 2 の直鎖状または分岐状のアルキル基、炭素数 $6\sim 1$ 2 のアリール基もしくはアリールアルキル基、または一般式(3)で表される基であり、g が $1\sim 4$ の整数であり、B 5 に該当する一般式(5)では R^{18} が炭素数 $2\sim 4$ のアルキレン基であり、 R^{19} 、 R^{20} 、 R^{21} および R^{22} がそれぞれ個別に水素、炭素数 $1\sim 6$ のアルキル基または水酸基であり、Y がメチレン基、炭素数 $1\sim 6$ のアルキル基または水酸基であり、Y がメチレン基、炭素数 $1\sim 6$ のアルキル基もしくは水酸基で置換されたメチレン基、イミノ基、炭素数 $1\sim 6$ のアルキル基もしくは水酸基で置換されたイミノ基または酸素であり、e=1 の場合は h=1 であり、e=2 の場合は h=0 または h=1 である(ただし、h=0 の場合、一般式(5)と一般式(1)とは同一のN(窒素)を共有する)ような含窒素化合物である。

[0022]

本発明の含窒素化合物としてさらに好ましいのは、

一般式 (1) における R^1 が水素または炭素数 $1 \sim 6$ のアルキル基、フェニル基または炭素数 $7 \sim 15$ のアルキルアリール基であり、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 が、水素または炭素数 $1 \sim 3$ のアルキル基または一般式 (2) で表される基 (R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 の 1 個の基が一般式 (2) で表される基であり、残りの 3 個がそれぞれ個別に水素または炭素数 $1 \sim 3$ のアルキル基)であり、

一般式(2)では R^7 および R^8 がそれぞれ個別に水素または炭素数 $1\sim3$ のアルキル基であり、 R^9 が炭素数 $2\sim4$ のアルキレン基であり、 R^{10} が炭素数 $1\sim1$ 2 のアルキル基であり、かつ f が $0\sim2$ 0 の整数であり、

 R^6 が炭素数 $3 \sim 6$ のアルキレン基であり、

 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} が炭素数 $1 \sim 3$ のアルキレン基であり、

aが $2\sim100$ の整数であって、bおよびcが個別に0または1であり、dが1、eが2であって、 ZがA1、A2、A4の中から選ばれる基であり、XがB1、B3、B4、B5の中から選ばれる基であり、

B 3 に該当する一般式(3)では R^{14} が炭素数 $1 \sim 3$ のアルキレン基であり、B 4 に該当する一般式(4)では R^{15} が炭素数 $2 \sim 3$ のアルキレン基であり、 R^{16}

が水素、メチル基、エチル基または一般式(3)で表される基であり、 R^{17} が水素、炭素数 $1\sim 6$ の直鎖状または分岐状のアルキル基、フェニル基、炭素数 $7\sim 9$ のアリールアルキル基、または一般式(3)で表される基であり、g が $1\sim 3$ の整数であり、B 5 に該当する一般式(5)では R^{18} が炭素数 $2\sim 3$ のアルキレン基であり、 R^{19} 、 R^{20} 、 R^{21} および R^{22} がそれぞれ個別に水素、炭素数 $1\sim 3$ のアルキル基または水酸基であり、Y がイミノ基、炭素数 $1\sim 3$ のアルキル基または水酸基であり、Y がイミノ基、炭素数 $1\sim 3$ のアルキル基もしくは水酸基で置換されたイミノ基または酸素であり、 R^{20} 0 かりまたは R^{20} 1 である(ただし、 R^{20} 2 を共有する)ような含窒素化合物である。

[0023]

本発明に係る含窒素化合物は、任意の方法で製造することができる。

一例としては、以下のような(A)ケチミン化工程、(B)重合工程および(C)加水分解工程を経て、一般式(1)で表される本発明の含窒素化合物を合成することができる。

<u>(A)ケチミン化工程</u>

分子中に2つ以上のアミノ基を有する化合物または少なくとも1つのアミノ基とアルカノール基、イミノ基、カルボキシル基等の別の活性水素基を併せ持つ化合物を出発物質として、これとケトンとを加熱、脱水反応することによりケチミン化合物を得る。

分子中に2つ以上のアミノ基を有する化合物としては、エチレンジアミン、プロピレンジアミン(1,2-ジアミノプロパン)、トリメチレンジアミン(1,3-ジアミノプロパン)等のジアミン、ジエチレントリアミン、ジプロピレントリアミン、ジ(トリメチレン)トリアミン、ジメチルアミノプロピレンジアミン、トリエチレンテトラミン、トリプロピレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン、テトラプロピレンペンタミン、ペンタエチレンヘキサミン、ペンタプロピレンヘキサミン等のポリアミン(N原子が3個以上)等が挙げられる。

分子中にアミノ基およびアルカノール基を有する化合物としては、モノメタノールアミン、モノエタノールアミン、モノーnープロパノールアミン、モノイソ

プロパノールアミン、モノ(直鎖または分枝)ブタノールアミン(水酸基の位置は任意である)、モノ(直鎖または分枝)ペンタノールアミン(水酸基の位置は任意である)、モノ(直鎖または分枝)ヘキサノールアミン(水酸基の位置は任意である)、2-(2-アミノエチルアミノ)エタノール等のアルカノールアミン等が挙げられる。

分子中にアミノ基およびイミノ基を有する化合物としては、上記ポリアミンおよび4-アミノメチルピペリジン等が挙げられる。

分子中にアミノ基およびカルボキシル基を有する化合物としては、アラニン、β-アラニン、N-(2-アミノエチル)グリシン等のアミノ酸が挙げられる。またケトンとしては、通常下記一般式(14)で表されるものが用いられる。 【化15】

$$\begin{array}{ccc}
R^{23} & C - R^{24} \\
0 & & & \\
0 & & & \\
\end{array} \tag{14}$$

(上記式(14)において、 R^{23} および R^{24} は、それぞれ別個に炭素数 $1\sim 10$ 、好ましくは $1\sim 5$ の直鎖状または分岐状のアルキル基を表す。)

また、上記一般式(14)で表される化合物の中でも、分岐状のアルキル基を 有する立体障害の大きいケトンが好ましく、イソブチルメチルケトン、イソブチ ルエチルケトン、ジイソブチルケトン等が好適に用いられる。

アルカノールアミンとケトンと反応させると、下記一般式 (15) で表される ケチミン化合物を得ることができる。

【化16】

$$HO-R^{6}-N=C_{R^{24}}$$
(15)

(上記式(15)において、 R^6 は一般式(1)における R^6 と同一の基を示し、 R^{23} および R^{24} は一般式(14)における R^{23} および R^{24} と同一の基を示す。)

アミノ酸をケトンと反応させると、下記一般式(16)で表されるケチミン化合物を得ることができる。

【化17】

$$HO - C - R^{11} - N = C$$

$$R^{23}$$

$$R^{24}$$
(16)

(上記式(1 6)において、 R^{11} はA群A 3 における R^{11} と同一の基を示し、 R^{23} および R^{24} は一般式(1 4)における R^{23} および R^{24} と同一の基を示す。)

また、ジアミンとケトンを反応させると、下記一般式(17)で表されるケチミン化合物を得ることができる。

【化18】

$$H_2N-R^{15}-N=C_{R^{24}}$$
 (17)

(上記式($1\ 7$)において、 R^{15} は一般式(4)における R^{15} と同一の基を示し、 R^{23} および R^{24} は一般式($1\ 4$)における R^{23} および R^{24} と同一の基を示す。)

また、ポリアミン(N原子が3以上)とケトンを反応させると、一般式 (18) または (19) で表されるケチミン化合物を得ることができる。

【化19】

$$R^{23} = N - R^{15} = N - R^{15} = N - R^{15} = N + R^{15} = N - R^{15} = N - R^{23} = N + R^{15} = N - R^{15} = N - R^{23} = N - R^{15} = N - R^{$$

$$H_{2}N-R^{\frac{15}{2}} = N = C R^{23}$$

$$R^{24}$$
(19)

(上記式(18)および(19)において、 R^{15} および R^{16} は一般式(4)における R^{15} および R^{16} と同一の基を示し、 R^{23} および R^{24} は一般式(14)における R^{23} および R^{24} と同一の基を示す。)

出発物質のアミンと、一般式(14)のケトンとを反応させる場合のモル比は、保護したいアミノ基と等モルのケトンを反応させることが好ましい。

アルカノールアミン、アミノ酸、ジアミンの場合は等モル、ポリアミン (N原子が3以上) の場合は等モルまたは2倍モルのケトンを反応させることが好ましい。

またケチミン化工程での反応温度は任意であるが、通常は40~180℃であるのが好ましく、80~150℃であるのがより好ましい。

(B) 重合工程

例えば、水酸化カリウム、水酸化ナトリウムなどの塩基を触媒とし、(A)のケチミン化工程で得られたケチミン化合物を反応開始剤として、一般式(20)で表されるエポキシ化合物を重合させることにより得た重合生成物(金属アルコキシドの形となっている)をそのまま、あるいは一般式(21)で表されるハロゲン化合物で反応を停止した後、無機酸や固体酸でこれを処理することにより、一般式(22)~(26)で表される末端にケチミン化合物を有するポリオキシアルキレングリコール誘導体を得る。

【化20】

$$R^{2} R^{3}$$

$$R^{4} - C - C - R^{5}$$

$$O$$
(20)
$$R^{1} - T$$
(21)

(一般式(20)および(21)において、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 は、式(1)中の R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 と同一の基を示し、Tは塩素、臭素またはヨウ素を示す。)

【化21】

$$R^{1} = \begin{bmatrix} R^{2} & R^{3} \\ O - C - C \\ R^{4} & R^{5} \end{bmatrix}_{2} O - R^{6} - N = C \begin{bmatrix} R^{23} \\ R^{24} \end{bmatrix}$$
 (22)

$$R^{1} = \begin{bmatrix} R^{2} & R^{3} \\ O - C - C \\ R^{4} & R^{5} \end{bmatrix}_{a} = \begin{bmatrix} C - C - R^{11} - N = C \\ O - C - R^{23} \end{bmatrix}_{a}$$
(23)

$$\begin{bmatrix} R^{1} & \begin{bmatrix} R^{2} & R^{3} \\ O - C - C \\ R^{4} & R^{5} \end{bmatrix}_{a} & \begin{bmatrix} N - R^{15} - N = C \\ H \end{bmatrix}_{i} \end{bmatrix}$$
 (24)

(上記一般式(2 2)、(2 3)および(2 4)におけるa、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 および R^6 は、一般式(1)におけるa、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 および R^6 と同一であり、 R^{11} はA群A3における R^{11} と同一であり、 R^{15} は一般式(4)における R^{15} と同一であり、 R^{23} 、 R^{24} は、一般式(1 4)における R^{23} 、 R^{24} と同一であり、 R^{15} は R^{24} と同一であり、 R^{24} と同一であり、 R^{24} と同一であり、 R^{24} と同一であり、 R^{24}

【化22】

$$R^{1} = \begin{bmatrix} R^{2} & R^{3} & R^{15} - N = C \\ R^{15} - N & g'-1 \end{bmatrix} R^{15} - N = C R^{23}$$

$$\begin{bmatrix} R^{15} - N & R^{15} - N = C \\ R^{4} & R^{5} \end{bmatrix} R^{15} - N = C R^{23}$$

$$\begin{bmatrix} R^{15} - N & R^{15} - N = C \\ R^{16} & g''-1 \end{bmatrix} R^{15} - N = C R^{24}$$

$$(25)$$

(上記式(2 5)における a、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 は、一般式(1)における a、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 と同一であり、 R^{15} 、 R^{16} 、g'および g'は一般式(4)における R^{15} 、 R^{16} 、gと同一であり、 R^{23} 、 R^{24} は、一般式(1 4)における R^{23} 、 R^{24} と同一である

【化23】

(上記式(2 6)における a、 d、 R 1 、 R 2 、 R 3 、 R 4 および R 5 は、一般式(1)における a、 d、 R 1 、 R 2 、 R 3 、 R 4 および R 5 と同一であり、 g、 R 15 、 R 16 は一般式(4)における g、 R 15 、 R 16 と同一であり、 R 23 、 R 24 は、一般式(1 4)における R 23 、 R 24 と同一であり、 i は d + i = 2 となるような整数を示す。)

[0024]

一般式(20)で表されるエポキシ化合物のうち好ましい化合物を例示すると 、エチレンオキシド、プロピレンオキシド、イソブチレンオキシド、1,2-ブ チレンオキシド、2,3-ブチレンオキシド、トリメチルエチレンオキシド、テ トラメチルエチレンオキシド、1,2-エポキシヘキサン、1,2-エポキシヘ プタン、1, 2-エポキシオクタン、1, 2-エポキシデカン、1, 2-エポキ シドデカン、1,2-エポキシテトラデカン、1,2-エポキシヘキサデカン、 1, 2-エポキシオクタデカン、メチルグリシジルエーテル、エチルグリシジル エーテル、nープロピルグリシジルエーテル、イソプロピルグリシジルエーテル 、n-ブチルグリシジルエーテル、イソブチルグリシジルエーテル、sec-ブ チルグリシジルエーテル、tert-ブチルグリシジルエーテル、直鎖または分 枝のペンチルグリシジルエーテル、直鎖または分枝のヘキシルグリシジルエーテ ル、直鎖または分枝のヘプチルグリシジルエーテル、直鎖または分枝のオクチル グリシジルエーテル、直鎖または分枝のノニルグリシジルエーテル、直鎖または 分枝のデシルグリシジルエーテル、直鎖または分枝のウンデシルグリシジルエー テル、直鎖または分枝のドデシルグリシジルエーテル、直鎖または分枝のトリデ シルグリシジルエーテル、直鎖または分枝のテトラデシルグリシジルエーテル、 直鎖または分枝のペンタデシルグリシジルエーテル、直鎖または分枝のヘキサデ

シルグリシジルエーテル、直鎖または分枝のヘプタデシルグリシジルエーテル、 直鎖または分枝のヘキサデシルグリシジルエーテル、直鎖または分枝のオクタデ シルグリシジルエーテル、ビニルグリシジルエーテル、直鎖または分枝のプロペ ニルグリシジルエーテル、直鎖または分枝のブテニルグリシジルエーテル、直鎖 または分枝のペンテニルグリシジルエーテル、直鎖または分枝のヘキセニルグリ シジルエーテル、直鎖または分枝のヘプテニルグリシジルエーテル、直鎖または 分枝のオクテニルグリシジルエーテル、直鎖または分枝のノネニルグリシジルエ ーテル、直鎖または分枝のデセニルグリシジルエーテル、直鎖または分枝のウン デセニルグリシジルエーテル、直鎖または分枝のドデセニルグリシジルエーテル 、直鎖または分枝のトリデセニルグリシジルエーテル、直鎖または分枝のテトラ デセニルグリシジルエーテル、直鎖または分枝のペンタデセニルグリシジルエー テル、直鎖または分枝のヘキサデセニルグリシジルエーテル、直鎖または分枝の ヘプタデセニルグリシジルエーテル、直鎖または分枝のヘキサデセニルグリシジ ルエーテル、直鎖または分枝のオクタデセニルグリシジルエーテル、フェニルグ リシジルエーテル、トリルグリシジルエーテル、キシリルグリシジルエーテル、 直鎖または分枝のプロピルフェニルグリシジルエーテル、直鎖または分枝のブチ ルフェニルグリシジルエーテル、直鎖または分枝のペンチルフェニルグリシジル エーテル、直鎖または分枝のヘキシルフェニルグリシジルエーテル、直鎖または 分枝のヘプチルフェニルグリシジルエーテル、直鎖または分枝のオクチルフェニ ルグリシジルエーテル、直鎖または分枝のノニルフェニルグリシジルエーテル、 直鎖または分枝のデシルフェニルグリシジルエーテル、直鎖または分枝のウンデ シルフェニルグリシジルエーテル、直鎖または分枝のドデシルフェニルグリシジ ルエーテル、直鎖または分枝のトリデシルフェニルグリシジルエーテル、直鎖ま たは分枝のドデシルフェニルグリシジルエーテル、1,2-エポキシー3-メト キシー5-オキサヘキサン、1,2-エポキシー4,7-ジオキサオクタン、4 **,5-エポキシ-2,7-ジオキサオクタン、1,2-エポキシ-5-メチル-**4, 7-ジオキサオクタン、1, 2-エポキシ-6-メチル-4, 7-ジオキサ オクタン、1,2-エポキシー5-(2-オキサプロピル)-4,7-ジオキサ オクタン、1,2-エポキシー3,5-ビス(2-オキサプロピル)-4,7ジオキサオクタン、1,2-エポキシ-3,6-ビス(2-オキサプロピル)-4,7-ジオキサオクタン、1,2-エポキシー6-メトキシー4,8-ジオキサノナン、1,2-エポキシー4,7,10-トリオキサウンデカン、1,2-エポキシー5-メチルー4,7,10-トリオキサウンデカン、1,2-エポキシー8-メチルー4,7,10-トリオキサウンデカン、4,5-エポキシー9-メチルー2,7,10-トリオキサウンデカン、1,2-エポキシー6,9-ビス(2-オキサプロピル)-4,7,10-トリオキサウンデカン、1,2-エポキシー6,9-ビス(2-オキサプロピル)-4,7,10-トリオキサウンデカン、1,2-エポキシー4,7,10,13-テトラオキサテトラデカン、4,5-エポキシー2,7,10,13-テトラオキサテトラデカン、7,8-エポキシー2,5,10,13-テトラオキサテトラデカン、1,2-エポキシー6,9,12-トリメチルー4,7,10,13-テトラオキサテトラデカン、1,2-エポキシー6,9,12-トリメチルー4,7,10,13-テトラオキサテトラデカンなどが挙げられる。

[0025]

ケチミン化合物と、一般式(20)のエポキシ化合物とを反応させる場合のモル比は任意に選ぶことができるが、通常は、ケチミン化合物1モルに対して、エポキシ化合物を5~100モル反応させるのが好ましい。

また重合工程での反応温度も任意であるが、通常は、60~180℃であるのが好ましく、80~150℃であるのがより好ましい。

<u>(C)</u>加水分解工程

上記工程で得られた、末端にケチミン化合物を有するポリオキシアルキレング リコール誘導体を過剰の水存在下で加熱処理することにより、一般式(1)で表 される本発明の含窒素化合物を得ることができる。

加水分解工程での反応温度も任意であるが、通常は、40~150℃であるのが好ましく、50~100℃であるのがより好ましい。

さらに末端にケチミン化合物を有するポリオキシアルキレングリコール誘導体 を加水分解して得られた末端のアミノ基に、一般式(20)のエポキシ化合物を 付加させることで、末端がアルカノールアミン型の含窒素化合物を得ることもで きる。

また、モルホリン、 $N-\beta-$ ヒドロキシエチルモルホリン、N-(2-ヒドロキシプロピル)モルホリン、ピペリジン、1-(2-ヒドロキシエチル)ピペリジン、2-ジメチルアミノエタノール、2-ジメチルアミノ-1-プロパノール、1-ジメチルアミノ-2-プロパノール、4-ジメチルアミノ-1-プタノール、2-ジメチルアミノ-2-メチルアミノ-1-プロパノール、2-ジメチルアミノ-2-メチルアミノ-1-プロパノール、1-ジエチルアミノ-2-プロパノール、1-ジエチルアミノ-2-プロパノール、1-ジエチルアミノ-2-プロパノール、1-ジエチルアミノエチルアミノエチルアミン、1-プロピルアミノプロピルアミン、1-プロピルアミノプロピルアミン、1-アミノピペリジン、1-(1-0)ピペリジン、1-(1-1)ピペリジン、1-1)ピペリジン、1-1 (1-1)ピペリジン、1-1 (1-1)ピペリジン、1-1 (1-1)ピペラジン等を用いた場合は、1-1 (1-1) エチルピペラジン、1-1 (1-1) で表される本発明の含窒素化合物を得ることができる。

別法として、以下のような(D)重合工程、(E)クロロホーメート化工程および(F)カルバメート化工程を経て、一般式(1)で表される本発明の含窒素化合物を合成することができる。

<u>(D)重合工程</u>

例えば、水酸化カリウム、水酸化ナトリウムなどの塩基またはそのアルコキシドを触媒として、反応開始剤として一般式(27)で表される含酸素化合物を用い、一般式(20)で表されるエポキシ化合物を重合させることにより重合生成物(金属アルコキシドの形となっている)を得た後、塩酸等の酸でこれを中和することにより、一般式(28)で表されるポリオキシアルキレングリコール誘導体を得る。

【化24】

$$R^{1}-OH (27)$$

$$R^{1} = \begin{bmatrix} R^{2} & R^{3} \\ O - C & C \\ R^{4} & R^{5} \end{bmatrix}_{a} OH$$
 (28)

一般式(27)および(28)における a、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 は、一般式(1)における a、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 と同一である。

一般式(27)の含酸素化合物と、一般式(20)のエポキシ化合物とを反応させる場合のモル比は任意に選ぶことができるが、通常は、含酸素化合物1モルに対して、エポキシ化合物を5~100モル反応させるのが好ましい。

また重合工程での反応温度も任意であるが、通常は、60~180℃であるのが好ましく、80~150℃であるのがより好ましい。

<u>(E) クロロホーメート化工程</u>

上記の重合工程で得られた一般式(28)のポリオキシアルキレングリコール 誘導体またはその中和前の金属アルコキシド化合物を、過剰量のホスゲンにて、 例えば室温でクロロホーメート化し、一般式(29)で表される塩素含有化合物 を得る。

【化25】

$$R^{1} = \begin{bmatrix} R^{2} & R^{3} \\ O - C - C \\ R^{4} & R^{5} \end{bmatrix}_{a} = \begin{bmatrix} O - C - CI \\ O \\ O \end{bmatrix}$$
 (29)

一般式(29)における a、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 は、一般式(1)

における a、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 と同一である。

<u>(F)カーバメート</u>化工程

上記のクロロホーメート化工程で得られた一般式(29)の塩素含有化合物と、一般式(30)で表されるアミン化合物を反応させることにより、本発明の含窒素化合物を得ることができる。

【化26】

$$H - \left[O - R^{12} \right]_{j} N - \left[X\right]_{2}$$
(30)

一般式(30)におけるXは、一般式(1)におけるe=2の場合のXと同一の基を示し、 R^{12} はA群A4における R^{12} と同一の基を示し、fはO3またはf0 ある。

なお、一般式(30)で表されるアミン化合物としては、エチレンジアミン、 プロピレンジアミン (1, 2-ジアミノプロパン)、トリメチレンジアミン (1, -ジアミノプロパン)、ジメチルアミノプロピルアミン、ジエチレントリアミ ン、ジプロピレントリアミン、ジ(トリメチレン)トリアミン、ジメチルアミノ プロピレンジアミン、トリエチレンテトラミン、トリプロピレンテトラミン、テ トラエチレンペンタミン、テトラプロピレンペンタミン、ペンタエチレンヘキサ ミン、ペンタプロピレンヘキサミン、ピペリジン、1-アミノピペリジン、4-アミノメチルピペリジン、1-(2-アミノエチル)ピペリジン、モルホリン、 4-アミノモルホリン、4-(2-アミノエチル)モルホリン、4-(3-アミ ノプロピル) モルホリン、ピペラジン、1-アミノ-4-メチルピペラジン、1 -(2-アミノエチル) ピペラジン、1-(3-アミノプロピル) ピペラジン、 モノメタノールアミン、モノエタノールアミン、モノーn-プロパノールアミン 、モノイソプロパノールアミン、モノ(直鎖または分枝)ブタノールアミン(水 酸基の位置は任意である)、モノ(直鎖または分枝)ペンタノールアミン(水酸 基の位置は任意である)、モノ(直鎖または分枝)ヘキサノールアミン(水酸基 の位置は任意である)、2-(2-アミノエチル)エタノール(式a参照)、D

ーグルカミン (式b参照)

【化27】

$$H_2N-CH_2CH_2-NH-CH_2CH_2OH$$
 (a)

ジメタノールアミン、ジエタノールアミン、ジーn-プロパノールアミン、ジイ ソプロパノールアミン、ジ(直鎖または分枝)ブタノールアミン(水酸基の位置 は任意である)、ジ(直鎖または分枝)ペンタノールアミン(水酸基の位置は任 意である)、ジ(直鎖または分枝)ヘキサノールアミン(水酸基の位置は任意で ある)、モノヒドロキシピロリジン、モノヒドロキシピロリン(水酸基の位置は 任意である)、モノヒドロキシピロール(水酸基の位置は任意である)、モノヒ ドロキシピラゾリジン(水酸基の位置は任意である)、モノヒドロキシピラゾリ ン(水酸基の位置は任意である)、モノヒドロキシピラゾール(水酸基の位置は 任意である)、モノヒドロキシイミダゾリジン(水酸基の位置は任意である)、 モノヒドロキシイミダゾリン(水酸基の位置は任意である)、モノヒドロキシイ ミダゾール(水酸基の位置は任意である)、モノヒドロキシフロキサン(水酸基 の位置は任意である)、モノヒドロキシピペリジン(水酸基の位置は任意である)、モノヒドロキシピペラジン(水酸基の位置は任意である)、モノヒドロキシ モルホリン(水酸基の位置は任意である)、モノヒドロキシインドリン(水酸基 の位置は任意である)、モノヒドロキシインドール(水酸基の位置は任意である)、モノヒドロキシイソインドール(水酸基の位置は任意である)、モノヒドロ キシプリン(水酸基の位置は任意である)、モノヒドロキシカルバゾール(水酸 基の位置は任意である)、モノヒドロキシ $-\beta$ -カルボリン(水酸基の位置は任 意である)、モノヒドロキシフェノキサジン(水酸基の位置は任意である)、モ ノヒドロキシペリミジン(水酸基の位置は任意である)、ジヒドロキシピロリジ ン、ジヒドロキシピロリン(水酸基の位置は任意である)、ジヒドロキシピロー

ル(水酸基の位置は任意である)、ジヒドロキシピラゾリジン(水酸基の位置は 任意である)、ジヒドロキシピラゾリン(水酸基の位置は任意である)、ジヒド ロキシピラゾール(水酸基の位置は任意である)、ジヒドロキシイミダゾリジン (水酸基の位置は任意である)、ジヒドロキシイミダゾリン(水酸基の位置は任 意である)、ジヒドロキシイミダゾール(水酸基の位置は任意である)、ジヒド ロキシフロキサン(水酸基の位置は任意である)、ジヒドロキシピペリジン(水 酸基の位置は任意である)、ジヒドロキシピペラジン(水酸基の位置は任意であ る)、ジヒドロキシモルホリン(水酸基の位置は任意である)、ジヒドロキシイ ンドリン(水酸基の位置は任意である)、ジヒドロキシインドール(水酸基の位 置は任意である)、ジヒドロキシイソインドール(水酸基の位置は任意である) 、ジヒドロキシプリン(水酸基の位置は任意である)、ジヒドロキシカルバゾー ル(水酸基の位置は任意である)、ジヒドロキシーβーカルボリン(水酸基の位 置は任意である)、ジヒドロキシフェノキサジン(水酸基の位置は任意である) 、ジヒドロキシペリミジン(水酸基の位置は任意である)、トリメタノールアミ ン、メチルジメタノールアミン、エチルジメタノールアミン、トリエタノールア ミン、メチルジエタノールアミン、エチルジエタノールアミン、トリーnープロ パノールアミン、メチルージーnープロパノールアミン、エチルージーnープロ パノールアミン、トリイソプロパノールアミン、メチルジイソプロパノールアミ ン、エチルジイソプロパノールアミン、トリ(直鎖または分枝)ブタノールアミ ン、メチルジ(直鎖または分枝)ブタノールアミン、エチルジ(直鎖または分枝)ブタノールアミン、トリ(直鎖または分枝)ペンタノールアミン、メチルジ(直鎖または分枝)ペンタノールアミン、エチルジ(直鎖または分枝)ペンタノー ルアミンなどを挙げることができる。

カーバメート化工程における一般式(29)の塩素含有化合物と、一般式(30)のアミン化合物を反応させる場合のモル比は任意に選ぶことができるが、通常は、塩素含有化合物1モルに対して、アミン化合物を少なくとも1モル以上反応させるのが好ましく、1~20モル反応させるのがより好ましい。

またカーバメート化工程での反応温度も任意であるが、通常は、-20~15 0℃であるのが好ましく、-10~80℃であるのがより好ましい。

[0026]

一般式(1)で表される含窒素化合物は、筒内直接噴射式ガソリンエンジン用ガソリン添加剤として非常に有用な化合物であり、ベースガソリンおよび必要に応じてその他のガソリン添加剤と混合して得られるガソリン組成物として用いられる。ガソリン組成物中の一般式(1)で表される含窒素化合物の含有量については特に規定されるものではないが、通常は、ガソリン組成物全量基準で、0.001~10質量%となるように選ばれる。筒内直接噴射式ガソリンエンジンにおける燃焼室内、特にキャビティ内の清浄性を向上させるためには、含有量の下限値が0.001質量%、好ましくは0.003質量%、より好ましくは0.005質量%、さらにより好ましくは0.01質量%、最も好ましくは0.015質量%であることが望ましい。また、ガソリンの諸性能に悪影響を及ぼさない、それ以上添加しても効果の向上が期待できないなどの点から、含有量の上限値が10質量%、好ましくは5質量%、より好ましくは4質量%、最も好ましくは3質量%であることが望ましい。

[0027]

上記ベースガソリンは、任意の方法で製造することができる。この際用いられるガソリン基材としては、具体的には例えば、任意の性状を有する、原油を常圧蒸留して得られる軽質ナフサ;接触分解法、水素化分解法などで得られる分解ガソリン;接触改質法で得られる改質ガソリン;オレフィンの重合によって得られる重合ガソリン;イソブタンなどの炭化水素に低級オレフィンを付加(アルキル化)することによって得られるアルキレート;軽質ナフサを異性化装置でイソパラフィンに転化して得られる異性化ガソリン;脱nーパラフィン油;ブタン;芳香族炭化水素化合物;プロピレンを二量化し、続いてこれを水素化して得られるパラフィン留分などが挙げられる。

典型的な配合例を示すと、無鉛ガソリンは、例えば

- (1) 改質ガソリン:0~70容量%
- (2)改質ガソリンの軽質留分(沸点範囲:25~120℃程度):0~35容量%
- (3) 改質ガソリンの重質留分(沸点範囲:110℃~200℃程度): 0~

4 5 容量%

- (4)分解ガソリン:0~50容量%
- (5)分解ガソリンの軽質留分(沸点範囲:25~90℃程度):0~45容量%
- (6)分解ガソリンの重質留分(沸点範囲:90~200℃程度):0~40容 量%
- (7) アルキレート: 0~40容量%
- (8) プロピレンを二量化し、続いてこれを水素化して得られるパラフィン留分: 0~30容量%(9) 異性化ガソリン: 0~30容量%
- (10) MTBE: 0~15容量%
- (11)軽質ナフサ:0~20容量%
- (12) ブタン:0~10容量%

を調合することによって得ることができる。

また、ベースガソリンを製造するにあたっては、ベンゼンの含有量を低減させる必要がある場合がある。その際のベンゼンの低減方法は任意であるが、特にベンゼンは改質ガソリン中に多く含まれていることから、改質ガソリンの配合割合を少なくすること、および

- (1) 改質ガソリンを蒸留してベンゼン留分を除去する
- (2) 改質ガソリン中のベンゼンをスルホラン等の溶剤を用いて抽出する
- (3) 改質ガソリン中のベンゼンを他の化合物に転化する
 - (A) ベンゼンを水素化しシクロヘキサン、メチルシクロペンタン等に転化する
 - (B) ベンゼンおよび炭素数9以上の芳香族炭化水素化合物とを反応させ、ト ルエン、キシレン、エチルベンゼン等に転化する
- (C) ベンゼンを低級オレフィン(エチレン、プロピレン等) または低級アル コール(メタノール、エタノール等) を用いてアルキル化する
- (4)接触改質装置の原料として、炭素数6の炭化水素化合物を蒸留して除去した脱硫重質ナフサを用いる
- (5)接触改質装置の運転条件を変更する

などの方法によって、改質ガソリン中のベンゼン濃度を低下させる処理を行い、 これをガソリン基材として用いることなどが、好適なものとして挙げられる。

[0028]

また、その他のガソリン添加剤としては、具体的には例えばコハク酸イミド、ポリアルキルアミンなどの一般式(1)で表される含窒素化合物以外の清浄分散剤;フェノール系、アミン系などの酸化防止剤;シッフ型化合物やチオアミド型化合物などの金属不活性化剤;有機リン系化合物などの表面着火防止剤;多価アルコールおよびそのエーテルなどの氷結防止剤;有機酸のアルカリ金属塩またはアルカリ土類金属塩、高級アルコール硫酸エステルなどの助燃剤;アニオン系界面活性剤、カチオン系界面活性剤、両性界面活性剤などの帯電防止剤;アゾ染料などの着色剤;アルケニルコハク酸エステルなどのさび止め剤;キリザニン、クマリンなどの識別剤;天然精油合成香料などの着臭剤等が挙げられる。これらの添加剤は、1種または2種以上を添加することができ、その合計添加量はガソリン組成物全量基準で0.1質量%以下とすることが好ましい。

[0029]

また、ベースガソリン、一般式(1)で表される含窒素化合物および必要に応じてその他のガソリン添加剤からなるガソリン組成物の性状、組成については、特に規定されるものではない。しかしながら、通常、JIS K 2254「石油製品-蒸留試験方法」によって測定される蒸留性状が、下記を満たすことが望ましい。

10容量%留出温度(T₁₀):35~55℃

30容量%留出温度 (T₃₀):55~75℃

50容量%留出温度(T₅₀):75~100℃

70容量%留出温度(T₇₀):100~130℃

90容量%留出温度(T₉₀):110~160℃

蒸留終点 :130~210℃

 T_{10} の下限値は3.5 \mathbb{C} 、好ましくは4.0 \mathbb{C} であることが望ましい。3.5 \mathbb{C} に満たない場合はインジェクタ内でガソリンコーギングを生じる可能性がある。一方、 T_{10} の上限値は5.5 \mathbb{C} 、好ましくは5.0 \mathbb{C} 、より好ましくは4.8 \mathbb{C} であること

が望ましい。55℃を超える場合には、低温始動性に不具合を生じる可能性がある。

 T_{30} の下限値は55 $\mathbb C$ 、好ましくは60 $\mathbb C$ であることが望ましい。55 $\mathbb C$ に満たない場合は高温運転性に不具合を生じたりインジェクタ内でガソリンのコーキングを生じたりする可能性がある。一方、 T_{30} の上限値は75 $\mathbb C$ 、好ましくは75 $\mathbb C$ 、好ましくは15 $\mathbb C$ 、以好ましくは15 $\mathbb C$ を超える場合には、低温運転性に不具合を生じる可能性がある。

 T_{50} の下限値は75 $\mathbb C$ 、好ましくは80 $\mathbb C$ であることが望ましい。75 $\mathbb C$ に満たない場合は高温運転性に不具合を生じる可能性がある。一方、 T_{50} の上限値は100 $\mathbb C$ 、好ましくは95 $\mathbb C$ 、より好ましくは95 $\mathbb C$ であることが望ましい。100 $\mathbb C$ を超える場合には、低温および常温運転性に不具合を生じる可能性がある

 T_{70} の下限値は100℃であることが望ましい。一方、 T_{70} の上限値は130℃、好ましくは125℃、より好ましくは123℃、最も好ましくは120℃であることが望ましい。130℃を越える場合は低温および常温運転性に不具合を生じる可能性がある。

 T_{90} の下限値は $1\,1\,0\,$ 、好ましくは $1\,2\,0\,$ であることが望ましい。一方、 T_{90} の上限値は、低温および常温運転性の点から、またエンジンオイルのガソリンによる希釈を低減させ、排出ガスの増加、エンジンオイルの劣化およびスラッジの発生を防止することができるなどの点から、 $1\,6\,0\,$ 、 $0\,$

蒸留終点の下限値は130℃であることが望ましい。一方、蒸留終点の上限値は、210℃、好ましくは200℃、より好ましくは195℃、最も好ましくは190℃であることが望ましい。終点が210℃を越える場合は常温運転性に不具合を生じる可能性がある。

[0030]

また、上記ガソリン組成物の蒸気圧にはなんら制限はないが、インジェクタ内でのガソリンコーキングの不具合が生じず、またエバポエミッションの量が抑えられることから、蒸気圧が70kPa以下、好ましくは65kPa以下、より好

ましくは60 k P a 以下、最も好ましくは55 k P a 以下であることが望ましい。ここで言う蒸気圧とは、J I S K 2258「原油及び燃料油蒸気圧試験方法(リード法)」により測定される蒸気圧(リード蒸気圧(R V P)を意味する

上記ガソリン組成物の密度(15°C)にはなんら制限はないが、 $0.73\sim0$. $77g/cm^3$ であることが望ましい。密度の下限値は $0.73g/cm^3$ 、好ましくは $0.735g/cm^3$ であり、 $0.73g/cm^3$ に満たない場合は燃費が悪化する可能性がある。一方、密度の上限値は $0.77g/cm^3$ 、好ましくは $0.76g/cm^3$ であり、 $0.77g/cm^3$ を超える場合は加速性の悪化やプラグのくすぶりを生じる可能性がある。

ここで、密度とは、JIS K 2249「原油及び石油製品の密度試験方法 並びに密度・質量・容量換算表」により測定される密度を意味する。

上記ガソリン組成物は、四エチル鉛などのアルキル鉛化合物を実質的に含有しないガソリンであり、たとえ極微量の鉛化合物を含有する場合でも、その含有量はJIS K 2255「ガソリン中の鉛分試験方法」の適用区分下限値以下である。

[0031]

上記ガソリン組成物において、オクタン価についてはなんら制限はないが、よりアンチノッキング性を高めるため、リサーチ法オクタン価(RON)が89以上、好ましくは90以上、より好ましくは90.5以上、最も好ましくは91以上であることが望ましい。また、より高速走行中のアンチノック性を高めるために、モーター法オクタン価(MON)が80以上、好ましくは80.5以上、最も好ましくは81以上であることが望ましい。

ここで、リサーチ法オクタン価およびモーター法オクタン価とは、それぞれ、 JIS K 2280「オクタン価及びセタン価試験方法」により測定されるリ サーチ法オクタン価およびモーター法オクタン価を意味する。

上記ガソリン組成物の飽和分、オレフィン分および芳香族分の各含有量にはなんら制限はないが、

飽和分(V(P)):50~100容量%

オレフィン分(V(O)):0~15容量%

芳香族分(V(Ar)) :0~35容量%

であることが望ましい。

V(P)は、インジェクタ内でのガソリンのコーキング防止、およびプラグのくすぶりを低減させる、排出ガスのオゾン生成能を低く抑える、排出ガス中のベンゼン濃度を低減させる、すすを発生させないなどの観点から、50~100容量%、好ましくは60~100容量%、より好ましくは70~100容量%であることが望ましい。

また、V(O)は、インジェクタ内でのガソリンのコーキング防止の観点から、0~15容量%、好ましくは0~10容量%、より好ましくは0~7容量%、最も好ましくは0~5容量%であることが望ましい。

さらに、V(Ar)は、プラグのくすぶりを低減させる、排出ガスのオゾン生成能を低く抑える、排出ガス中のベンゼン濃度を低減させる、すすを発生させないなどの観点から、0~35容量%、好ましくは0~30容量%、より好ましくは0~25容量%、最も好ましくは0~20容量%であることが望ましい。

上記のV(P)、V(O)およびV(Ar)は、全てJIS K 2536「石油製品-炭化水素タイプ試験方法」の蛍光指示薬吸着法により測定される値である。

[0032]

また、上記ガソリン組成物の各成分の含有量にはなんら制限はないが、以下のような条件を満たすことが望ましい。

- (1) V (Bz):0~1 容量%
- (2) V (To1):0~30容量%
- (3) V (C₈A):0~20容量%
- (4) V (C_qA): 0~5容量%
- (5) V (C₁₀+A): 0~3容量%
- (6) V(PA) = 0

または

V (PA) ≠0の際にV (MA) /V (PA):1以上

- (7) V (C₄):0~10容量%
- (8) V (C₅):10~35容量%
- (9) V (C₆):10~30容量%
- (10) V (C₇⁺p):10~50容量%
- (11) V (Cg⁺):0~10容量%

上記のV(Bz)は、ガソリン組成物全量基準のベンゼン含有量を示し、その値が $0\sim1$ 容量%、好ましくは $0\sim0$. 5容量%であることが望ましい。ベンゼンの含有量を $0\sim1$ 容量%とすることによって、排出ガス中のベンゼン濃度を低く抑えることができる。

上記のV (T o 1) およびV (C_8 A) は、それぞれガソリン組成物全量基準のトルエン含有量および炭素数 8 の芳香族炭化水素化合物含有量を示し、V (T o 1) が 0 ~ 3 0 容量%、好ましくは 0 ~ 2 0 容量%、V (C_8 A) が 0 ~ 2 0 容量%、好ましくは 0 ~ 1 5 容量%にあることが望ましい。なお、炭素数 8 の芳香族炭化水素化合物には、エチルベンゼン、キシレン(全ての置換異性体を含む)等が含まれる。

上記の $V(C_9A)$ は、ガソリン組成物全量基準の炭素数9の芳香族炭化水素化合物含有量を示し、排出ガスのオゾン生成能を低く抑えるために、その値は0~5容量%、好ましくは0~3容量%に抑えられることが望ましい。炭素数9の芳香族炭化水素には、n-プロピルベンゼン、イソプロピルベンゼン(クメン)、エチルメチルベンゼン(全ての置換異性体を含む)、トリメチルベンゼン(全ての置換異性体を含む)等が包含される。

上記の $V(C_{10}^{+}A)$ は、ガソリン組成物全量基準の炭素数10以上の芳香族炭化水素化合物含有量を示し排出ガスのオゾン生成能を低く抑えるために、その量が $0\sim3$ 容量%、好ましくは $0\sim1$ 容量%、より好ましくは0容量%に抑えられることが望ましい。炭素数10以上の芳香族炭化水素化合物には、ジエチルベンゼン(全ての置換異性体を含む)、ジメチルエチルベンゼン(全ての置換異性体を含む)、10以上の芳香族炭化水素化合物には、ジエチルベンゼン(全ての置換異性体を含む)、10以上の芳香族炭化水素化合物には、ジエチルベンゼン(全ての置換異性体を含む)、10以上の芳香族炭化水素化合物には、ジエチルベンゼン(全ての置換異性体を含む)、10以上の芳香族炭化水素化合物には、ジエチルベンゼン(全ての置換異性体を含む)、10以上の芳香族炭化水素化合物には、ジエチルベンゼン(全ての置換異性体を含む)、10以上の芳香族炭化水素化合物には、ジエチルベンゼン(全ての置換異性体を含む)等が包含される。

[0033]

上記のV(MA) およびV(PA) は、それぞれガソリン組成物全量を基準としたモノアルキル置換芳香族炭化水素化合物含有量(容量%) および2つ以上のアルキル基で置換された芳香族炭化水素化合物含有量(容量%) を示すが、本発明にあってはV(PA)が0であるか、またはV(PA)が0でない場合は、前者の含有量と後者の含有量の比、V(MA)/V(PA)が1以上、好ましくは1.5以上、より好ましくは2以上に維持されることが望ましい。

なお、上記したV (Bz)、V (To1)、V (C_8A)、V (C_9A)、V (C_10^+A)、V (MA) およびV (PA) は、いずれもJIS K 2536「石油製品-炭化水素タイプ試験方法」のガスクロマトグラフ法で定量して得られる値である。

上記の $V(C_4)$ は、ガソリン組成物全量を基準とした炭素数 4 の炭化水素化合物含有量を示す。エバポエミッションの量をより低く抑えられる点から、 $V(C_4)$ が $0\sim1$ 0 容量%、好ましくは $0\sim5$ 容量%、より好ましくは $0\sim3$ 容量%であることが望ましい。炭素数 4 の炭化水素化合物としては、n- ブタン、2- メチルブタン(イソブタン)、1- ブテン、2- ブテン、2- メチルプロペン等がある。

上記のV(C_5)は、ガソリン全量を基準とした炭素数 5 の脂肪族炭化水素化合物含有量を示し、その下限値が 1 0 容量%、好ましくは 1 5 容量%、上限値が 3 5 容量%、好ましくは 3 0 容量%の範囲にあることが望ましい。炭素数 5 の脂肪族炭化水素化合物の含有量を 1 0 容量%以上にすることで、常温運転性により優れたガソリン組成物が得られる。また、これを 3 5 容量%以下にすることで高温運転性により優れたガソリン組成物が得られる。そして、インジェクタ内でのガソリンのコーキング防止の観点から、炭素数 5 の脂肪族炭化水素化合物の中の不飽和炭化水素化合物の含有量(V(C_5 o))(容量%)が 0 であるか、あるいは炭素数 5 の脂肪族炭化水素化合物の中の飽和炭化水素化合物の含有量(V(C_5 p))(容量%)とV0 (V0 (V0 (V0) とV0 とV0) とV0 (V0) とV0 とV0 とV0) とV0 とV

(ネオペンタン)等が包含され、同じく不飽和脂肪族炭化水素化合物には、1-ペンテン、2-ペンテン、2-メチル-1-ブテン、2-メチル-2-ブテン、3-メチル-1-ブテン等が包含される。

[0034]

上記のV(C₆)は、ガソリン組成物全量を基準とした炭素数6の脂肪族炭化 水素化合物の含有量を示し、その下限値が10容量%、好ましくは15容量%、 上限値が30容量%、好ましくは25容量%の範囲にあることが望ましい。炭素 数6の脂肪族炭化水素化合物の含有量を10容量%以上にすることで、常温運転 性により優れたガソリン組成物が得られる。また、これを30容量%以下にする ことで高温運転性により優れたガソリン組成物が得られる。そして、インジェク タ内でのガソリンのコーキング防止の観点から、炭素数6の脂肪族炭化水素化合 物の中の飽和炭化水素化合物の含有量(V ($C_6\circ$))(容量%)が 0 であるか 、或るいは炭素数6の脂肪族炭化水素化合物の中の飽和炭化水素化合物の含有量 $(V(C_{6}P))$ (容量%)と $V(C_{6}O)$ との比、すなわち、 $V(C_{6}P)/V$ $(C_{6}\circ)$ は 2 以上、好ましくは 3 以上、より好ましくは 5 以上、最も好ましく は10以上であることがさらに望ましい。炭素数6の飽和脂肪族炭化水素化合物 としては、n-ヘキサン、2-メチルペンタン、3-メチルペンタン、2, 2-ジメチルブタン、2,3-ジメチルブタン等があり、同じく不飽和脂肪族炭化水 素化合物としては、1-ヘキセン、2-ヘキセン、3-ヘキセン、2-メチル-1-ペンテン、3-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、2-メ チルー2ーペンテン、3ーメチルー2ーペンテン、4ーメチルー2ーペンテン、 2, 3-ジメチル-1-ブテン、3, 3-ジメチル-1-ブテン、2, 3-ジメ チルー2-ブテン等がある。

上記のV(C7⁺p)は、ガソリン組成物全量を基準とした炭素数7以上の飽和脂肪族炭化水素化合物の含有量を示し、その下限値が10容量%、好ましくは20容量%、上限値が50容量%、好ましくは45容量%の範囲にあることが望ましい。炭素数7以上の飽和脂肪族炭化水素化合物の含有量を10容量%以上にすることで、常温運転性により優れたガソリン組成物が得られ、これを50容量%以下にすることで高温運転性により優れたガソリン組成物が得られる。炭素数7

以上の飽和脂肪族炭化水素化合物としては、n-ヘプタン、2-メチルヘキサン、3-メチルヘキサン、2, 2-ジメチルペンタン、2, 3-ジメチルペンタン、2, 4-ジメチルペンタン、3, 3-ジメチルペンタン、3-エチルペンタン、2, 2, 2, 3-トリメチルブタン等ある。

上記 $V(C_9^+)$ は、ガソリン組成物全量を基準とした炭素数9以上の炭化水素化合物の含有量を示し、低温および常温運転性の点から、またエンジンオイルのガソリン希釈を低減させ、排出ガスの増加、エンジンオイルの劣化およびスラッジ発生を防止できることなどから、この値が $0\sim1$ 0容量%、好ましくは $0\sim5$ 容量%、より好ましくは0容量%であることが望ましい。

なお、上記した $V(C_4)$ 、 $V(C_5)$ 、 $V(C_5P)$ 、 $V(C_5P)$ 、 $V(C_6P)$ 、 $V(C_6P)$ 、 $V(C_6P)$ 、 $V(C_6P)$ 、 $V(C_6P)$ 、 $V(C_6P)$ 0、 $V(C_6P)$ 0、 $V(C_7P)$ 0 および $V(C_9P)$ 0 は、以下に示すガスクロマトグラフィー法により定量される値である。すなわち、カラムにはメチルシリコンのキャピラリーカラム、キャリアガスにはヘリウムまたは窒素を、検出器には水素イオン化検出器(FID)を用い、カラム長25~50m、キャリアガス流量0.5~1.5m1/min、分割比1:50~1:250、注入口温度150~250℃、初期カラム温度-10~10℃、終期カラム温度150~250℃、検出器温150~250℃の条件で測定した値である。

[0035]

上記ガソリン組成物において、含酸素化合物の含有量はなんら制限はないが、ガソリン組成物全量基準で酸素元素換算で0~2.7質量%、好ましくは0~2.0質量%であることが望ましい。2.7質量%を越える場合は、ガソリン組成物の燃費が悪化し、また排出ガス中のNOxが増加する可能性がある。

ここで含酸素化合物とは、炭素数2~4のアルコール類、炭素数4~8のエーテル類などを指す。本発明に係るガソリン組成物に配合可能な含酸素化合物としては、エタノール、メチルターシャリーブチルエーテル(MTBE)、エチルターシャリーブチルエーテル、ターシャリーアミルメチルエーテル(TAME)、ターシャリーアミルエチルエーテルなどがあり、なかでもMTBE、TAMEが好ましく、最も好ましくはMTBEである。なお、メタノールは排出ガス中のアルデヒド濃度が高くなる可能性があり、腐食性もあるので好ましくない。

上記ガソリン組成物は、硫黄分含有量になんら制限はないが、ガソリン組成物全量基準で、50ppm以下、好ましくは30ppm以下、より好ましくは20ppm以下、最も好ましくは10ppm以下であることが望ましい。硫黄分含有量が50ppmを越える場合、排出ガス処理触媒の性能に悪影響を及ぼし、排出ガス中のNOx、CO、HCの濃度が高くなる可能性があり、またベンゼンの排出量も増加する可能性がある。

ここで、硫黄分とは、JIS K 2541「原油及び石油製品-硫黄分試験方法」により測定される硫黄分を意味している。

[0036]

上記ガソリン組成物は、JIS K 2261「石油製品-自動車ガソリン及び航空燃料油-実在ガム試験方法-噴射蒸発法」により測定した未洗実在ガムが、20mg/100ml以下であって、洗浄実在ガムが3mg/100ml以下、好ましくは1mg/100ml以下であることが望ましい。未洗実在ガムおよび洗浄実在ガムが上記の値を超えた場合は、燃料導入系統において析出物が生成したり、吸入弁が膠着する心配がある。

上記ガソリン組成物の、JIS K 2279「原油及び石油製品-発熱量試験方法及び計算による推定方法」により測定した総発熱量は、40000J/g以上、好ましくは45000J/g以上であることが望ましい。

上記ガソリン組成物の、JIS K 2287「ガソリン酸化安定度試験方法 (誘導期間法)」によって測定した酸化安定度は、480分以上、好ましくは140分以上であることが望ましい。酸化安定度が480分に満たない場合は、貯蔵中にガムが生成する可能性がある。

上記ガソリン組成物は、銅板腐食(50 \mathbb{C} 、3 h)が1、好ましくは1 a \mathbb{C} あることが望ましい。銅板腐食が1 を越える場合は、燃料系統の導管が腐食する可能性がある。ここで、銅板腐食とは、 \mathbf{J} \mathbf{I} \mathbf{S} \mathbf{K} \mathbf{Z} \mathbf{S} \mathbf{I} \mathbf{S} \mathbf{S}

[0037]

さらに、上記ガソリン組成物は、灯油混入量が0~4容量%であることが望ま

しい。ここで、灯油混入量とはガソリン組成物全量基準での炭素数 $13 \sim 14$ の 炭化水素含有量(容量%)を表し、この量は以下に示すガスクロマトグラフィー 法により定量して得られるものである。すなわち、カラムにはメチルシリコンのキャピラリーカラム、キャリアガスにはヘリウムまたは窒素を、検出器には水素イオン化検出器(FID)を用い、カラム長 $25 \sim 50$ m、キャリアガス流量 $0.5 \sim 1.5 =$

[0038]

【実施例】

以下に本発明の実施例を説明するが、これら実施例は本発明を限定するものではない。

まず、実施例で用いた含窒素化合物の合成例を以下に示す。

合成例1

温度計、攪拌機、還流冷却器および窒素導入口を備えた耐圧反応容器にモノエタノールアミン6.1g(0.1モル)、メチルイソブチルケトン10g(0.1モル)およびトルエン100m1を仕込み、反応容器内を窒素で置換した後、120℃で5時間加熱し、脱水およびケチミン化反応させた。ケチミン化反応後室温まで冷却し、これに付加触媒として水酸化カリウム5.6gを加え、窒素ガス置換した後120℃まで加熱し、プロピレンオキサイド87.0g(1.5モル)、1,2ーブチレンオキサイド108.2g(1.5モル)を加え、5時間反応させた後、反応生成物溶液を酸により中和、濾過し、付加触媒を除去した。さらに水5gを加え、90℃で3時間加水分解反応を行った。続いて過剰の水、トルエンおよびケトンを除去することにより、目的とする含窒素化合物180gを得た。

この含窒素化合物は数平均分子量が約2000の油状の液体であり、薄い黄色を呈していた。 ¹³C - NMR分析の結果、この含窒素化合物は式(31)で示される平均構造を有するランダム共重合体であった。

【化28】

$$H \xrightarrow{\text{OCHCH}_2} \int_{5} \left(\begin{array}{c} \text{OCHCH}_2 \\ \text{CH}_2 \\ \text{CH}_3 \end{array} \right) = OCH_2CH_2NH_2$$

$$CH_3$$
(31)

温度計、攪拌機、還流冷却器および窒素導入口を備えた耐圧反応容器にモノエタノールアミン6.1g(0.1モル)、ジイソブチルケトン14.2g(0.1モル)およびトルエン100m1を仕込み、反応容器内を窒素で置換した後、120℃で5時間加熱し、脱水およびケチミン化反応させた。ケチミン化反応後室温まで冷却し、これに付加触媒として水酸化カリウム5.6gを加え、窒素ガス置換した後120℃まで加熱し、1,2ーブチレンオキサイド216.3g(3.0モル)を加え、5時間反応させた後、反応生成物溶液を酸により中和、濾過し、付加触媒を除去した。さらに水5gを加え、90℃で3時間加水分解反応を行った。続いて過剰の水、トルエンおよびケトンを除去することにより、目的とする含窒素化合物205gを得た。

この含窒素化合物は数平均分子量が約2200の油状の液体であり、薄い黄色を呈していた。 ¹³C-NMR分析の結果、この含窒素化合物は式(32)で示される平均構造を有する重合体であった。

【化29】

$$H \xrightarrow{\text{OCHCH}_2} \xrightarrow{\text{P0}} \text{OCH}_2\text{CH}_2\text{NH}_2$$

$$\xrightarrow{\text{CH}_2} \xrightarrow{\text{CH}_3}$$
(32)

合成例3

温度計、攪拌機、還流冷却器および窒素導入口を備えた耐圧反応容器にモノエタノールアミン $6.1g(0.1 \pm n)$ 、メチルイソブチルケトン $10g(0.1 \pm n)$ およびトルエン100m1を仕込み、反応容器内を窒素で置換した後、120で 5 時間加熱し、脱水およびケチミン化反応させた。ケチミン化反応後室温まで冷却し、これに付加触媒として水酸化カリウム 5.6g を加え、窒素ガ

ス置換した後120℃まで加熱し、プロピレンオキサイド40.6g(0.7モル)、2-エチルヘキシルグリシジルエーテル130.4g(0.7モル)を加え、5時間反応させた。次いで2-クロロブタン9.3g(0.1モル)を加え2時間反応させた後、反応生成物溶液を精製、濾過し、付加触媒を除去した。さらに水5gを加え、90℃で3時間加水分解反応を行った。続いて過剰の水、トルエンおよびケトンを除去した後、エチレンオキサイド8.8g(0.2モル)を付加させることにより、目的とする含窒素化合物160gを得た。

この含窒素化合物は数平均分子量が約1900の油状の液体であり、薄い黄色を呈していた。¹³C-NMR分析の結果、この含窒素化合物は式(33)で示される平均構造を有するランダム共重合体であった。

【化30】

$$\begin{array}{c} \text{CH}_{3}\text{CH}_{2}\text{CH} - \left(\begin{array}{c} \text{OCHCH}_{2} \\ \text{CH}_{3} \end{array}\right) \left(\begin{array}{c} \text{OCHCH}_{2} \\ \text{CH}_{3} \end{array}\right) \left(\begin{array}{c} \text{CH}_{2}\text{CH}_{2}\text{OH} \\ \text{CH}_{3} \end{array}\right) \\ \text{CH}_{2}\text{CH}_{2}\text{CH}_{2}\text{OH} \\ \text{O} \\ \text{CH}_{2}\text{CHC}_{4}\text{H}_{9} \\ \text{C}_{2}\text{H}_{5} \end{array} \tag{33}$$

合成例4

温度計、攪拌機、還流冷却器および窒素導入口を備えた耐圧反応容器にジエチレントリアミン10.3g(0.1モル)、ジイソブチルケトン28.4g(0.2モル)およびトルエン100mlを仕込み、反応容器内を窒素で置換した後、120℃で5時間加熱し、脱水およびケチミン化反応させた。ケチミン化反応後室温まで冷却し、これに付加触媒として水酸化カリウム5.6gを加え、窒素ガス置換した後120℃まで加熱し、プロピレンオキサイド40.6g(0.7モル)、tertーブチルグリシジルエーテル130.2g(1.0モル)を加え、5時間反応させた後、反応生成物溶液を酸により中和、濾過し、付加触媒を除去した。さらに水5gを加え、90℃で3時間加水分解反応を行った。続いて過剰の水、トルエンおよびケトンを除去することにより、目的とする含窒素化合

物165gを得た。

この含窒素化合物は数平均分子量が約1800の油状の液体であり、薄い黄色を呈していた。 ¹³C-NMR分析の結果、この含窒素化合物は式(34)で示されるの平均構造を有するランダム共重合体であった。

【化31】

$$H \xrightarrow{\text{OCHCH}_2} \xrightarrow{\text{I0}} \left(\begin{array}{c} \text{OCHCH}_2 \\ \text{CH}_2 \end{array} \right) \xrightarrow{\text{CH}_2\text{CH}_2\text{NH}_2}$$

$$CH_2 \text{CH}_2 \text{NH}_2$$

$$CH_3 \text{CC-CH}_3$$

$$CH_3 \text{CH}_3$$

$$CH_3 \text{CH}_3$$

$$CH_3 \text{CH}_3$$

合成例5

温度計、攪拌機、還流冷却器および窒素導入口を備えた耐圧反応容器にモノエタノールアミン6.1g(0.1モル)、ジイソブチルケトン14.2g(0.1モル)およびトルエン100m1を仕込み、反応容器内を窒素で置換した後、120℃で5時間加熱し、脱水およびケチミン化反応させた。ケチミン化反応後室温まで冷却し、これに付加触媒として水酸化カリウム5.6gを加え、窒素ガス置換した後120℃まで加熱し、1,2ーブチレンオキサイド180.3g(2.5モル)を加え、5時間反応させ、さらに1,2ーエポキシヘキサデカン24.0g(0.1モル)を加え、2時間反応させた後、反応生成物溶液を酸により中和、濾過し、付加触媒を除去した。さらに水5gを加え、90℃で3時間加水分解反応を行った。続いて過剰の水、トルエンおよびケトンを除去した後、エチレンオキサイド4.4g(0.1モル)を付加させることにより、目的とする含窒素化合物190gを得た。

この含窒素化合物は数平均分子量が約2150の油状の液体であり、黄色を呈していた。 ¹³C - NMR分析の結果、この含窒素化合物は式(35)で示される平均構造を有する重合体であった。

【化32】

tertーブタノール4.45g(0.06モル)および水酸化カリウム3.37g(0.06モル)を内容量1リットルのオートクレーブに入れ、系内を窒素ガスで置換後、90 に加熱する。その後、トルエン100 m1、2 ーエチルヘキシルグリシジルエーテル67.1g(0.36モル)、プロピレンオキシド62.7g(1.08モル)をこれに加え、反応温度120 で5時間反応させた。反応終了後、反応生成物溶液を塩酸により中和し、次いでトルエン抽出および溶媒のトルエンを留去することにより、ポリオキシアルキレン化合物120 gを得た。

次いでこのポリオキシアルキレン化合物 8 9. 4 g(0. 0 4 モル相当:重量 平均分子量より計算)とトルエン 100m1 の混合溶液に、液体ホスゲン 8. 0 g(0. 0 8 1 モル)を 0 \mathbb{C} の条件下で添加し、ドライアイスで環流管を冷却しながら室温で 12 時間反応を行った。反応終了後、余分のホスゲンを除去し、溶媒のトルエンを留去し、塩素含有化合物 8 8 g を得た。

次いでトルエン100m1、とエチレンジアミン24.0g(0.4 モル)の混合溶液を5 \mathbb{C} に冷却後、上記の塩素含有化合物85.0g(0.037 モル相当:重量平均分子量より計算)を滴下し、5 \mathbb{C} に系を保ったまま3時間反応させ、その後室温で2時間反応させた。反応終了後、未反応のエチレンジアミン、生成した塩酸塩および溶媒のトルエンを除去し、精製することにより目的とする含窒素化合物82g を得た。

この含窒素化合物は数平均分子量が約2300の油状の液体であり、濃い橙色を呈していた。 13 C-NMR分析の結果、この含窒素化合物は式(36)で示されるの平均構造を有するランダム共重合体であった。

【化33]

$$\begin{array}{c} \text{CH}_{3} & \xrightarrow{\text{CH}_{3}} & \text{OCHCH}_{2} \xrightarrow{\text{CH}_{2}} & \text{OCHCH}_{2} \xrightarrow{\text{I}_{8}} & \text{O-C-N-CH}_{2}\text{CH}_{2}\text{NH}_{2} \\ \text{CH}_{3} & \xrightarrow{\text{CH}_{2}} & \text{CH}_{2} & \text{CH}_{3} & \text{OH} \end{array}$$

$$\begin{array}{c} \text{CH}_{2}\text{CHC}_{4}\text{H}_{9} \\ \text{C}_{2}\text{H}_{5} \end{array}$$

$$(36)$$

tertーブタノール4.45g(0.06モル)および水酸化カリウム3.37g(0.06モル)を内容量1リットルのオートクレーブに入れ、系内を窒素ガスで置換後、90℃に加熱する。その後、トルエン100m1、1,2ーブチレンオキシド64.9g(0.90モル)、プロピレンオキシド52.2g(0.90モル)をこれに加え、反応温度120℃で5時間反応させた。反応終了後、反応生成物溶液を塩酸により中和し、次いでトルエン抽出および溶媒のトルエンを留去することにより、ポリオキシアルキレン化合物108gを得た。

次いでこのポリオキシアルキレン化合物 8 1. 0 g (0.04 モル相当:重量 平均分子量より計算) とトルエン 100m1 の混合溶液に、液体ホスゲン 8.0 g (0.081 モル)を 0 C の条件下で添加し、ドライアイスで環流管を冷却しながら室温で 12 時間反応を行った。反応終了後、余分のホスゲンを除去し、溶媒のトルエンを留去し、塩素含有化合物 76 g を得た。

次いでトルエン100m1、ピリジン100m1とトリエタノールアミン59.6g(0.4モル)の混合溶液を5℃に冷却後、上記の塩素含有化合物73.1g(0.035モル相当:重量平均分子量より計算)を滴下し、5℃に系を保ったまま3時間反応させ、その後室温で2時間反応させた。反応終了後、未反応のトリエタノールアミン、生成した塩酸塩および溶媒のトルエンを除去し、精製することにより目的とする含窒素化合物68gを得た。

この含窒素化合物は数平均分子量が約2200の油状の液体であり、濃い橙色を呈していた。 ¹³C-NMR分析の結果、この含窒素化合物は式(37)で示されるの平均構造を有するランダム共重合体であった。

【化34】

$$\begin{array}{c}
\text{CH}_{3} \\
\text{CH}_{3} \\
\text{CH}_{3}
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
\text{OCHCH}_{2} \\
\text{CH}_{2}
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
\text{OCHCH}_{2} \\
\text{CH}_{3}
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
\text{CH}_{2}\text{CH}_{2}\text{OH}$$

$$\begin{array}{c}
\text{CH}_{2}\text{CH}_{2}\text{OH}$$

$$\begin{array}{c}
\text{CH}_{2}\text{CH}_{2}\text{OH}$$

$$\begin{array}{c}
\text{CH}_{2}\text{CH}_{2}\text{OH}$$

$$\begin{array}{c}
\text{CH}_{2}\text{CH}_{2}\text{OH}$$

水酸化カリウム3.37g(0.06モル)を内容量1リットルのオートクレーブに入れ、系内を窒素ガスで置換後、90℃に加熱する。その後、トルエン100ml、1,2ーブチレンオキシド129.8g(1.80モル)をこれに加え、反応温度120℃で5時間反応させた。反応終了後、反応生成物溶液を塩酸により中和し、次いでトルエン抽出および溶媒のトルエンを留去することにより、ポリオキシアルキレン化合物115gを得た。

次いでこのポリオキシアルキレン化合物 8 7. 3 g (0.04 モル相当:重量 平均分子量より計算) とトルエン 100m1 の混合溶液に、液体ホスゲン 8.0 g (0.081 モル)を 0 C の条件下で添加し、ドライアイスで環流管を冷却しながら室温で 12 時間反応を行った。反応終了後、余分のホスゲンを除去し、溶媒のトルエンを留去し、塩素含有化合物 80 g を得た。

次いでトルエン100m1、ピリジン100m1とモルホリン $34.8g(0.4 \pm 1)$ の混合溶液を5℃に冷却後、上記の塩素含有化合物 $78.5g(0.035 \pm 1)$ を滴下し、5℃に系を保ったまま 3 時間反応させ、その後室温で2 時間反応させた。反応終了後、未反応のモルホリン、生成した塩酸塩および溶媒のトルエンを除去し、精製することにより目的とする含窒素化合物 73g を得た。

この含窒素化合物は数平均分子量が約2300の油状の液体であり、濃い橙色を呈していた。 ¹³C - NMR分析の結果、この含窒素化合物は式(38)で示されるの平均構造を有する重合体であった。

【化35】

[0039]

実施例1~8および比較例1

接触改質ガソリン60容量部、接触分解ガソリン30容量部、アルキレート10容量部を混合して以下の性状を有する基材ガソリン(内燃機関用ガソリン)を調製した。

基材ガソリン性状

リード蒸気圧: 0. 65kgf/cm2

重:0.727

沸点範囲 :30~190℃

オクタン価 :98.1

この基材ガソリンと合成例 $1\sim 8$ で得られた本発明の含窒素化合物を用い、表1 の各例(実施例 $1\sim 8$)に示すような配合により、本発明に係る燃料油組成物を調製した。

これらの各燃料油組成物に対して以下に示すエンジン評価試験を行った。その 結果を表1に示した。

[0040]

[エンジン評価試験]

排気量1.8Lの筒内直接噴射式ガソリンエンジンを装備した乗用車を使用し、10.15モードを400時間繰り返した後、10.15モードに準拠して排出ガスを採取し、THC (Total HydroCarbon)排出量を測定した。さらに40km/h定速走行を行い、Bosch式スモークメーターで5倍量採取してスモーク量を測定し、その後エンジンを分解して燃焼室内デポジットの量を測定し、基材ガソリンのみを用いた場合のTHC量、スモーク量および燃焼室内デポジット量との差を求めた。

[0041]

【表1】

			実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	比較例
組成		基材ガソリン	[99.98]	[86.66]	[86.66]	[86:66]	[86.66]	[99.98]	[86.66]	[86.66]	[100]
(質量 %)		桃	合成倒1	60000000000000000000000000000000000000	哈政倒3	哈 政密4	合成例5	合成例6	哈 政愈7	哈 茲愈8	, 1
		化合物	[0.02]	[0.02]	[0.05]	[0.02]	[0.02]	[0.02]	[0.02]	[0.02]	
н	トポ	キャピティ内	124	138	109	86	133	144	156	149	504
ソジソ	ソシエ	キャビティ外	565	580	493	524	559	578	298	553	836
試験は	中 馬	ずいかーやバド	825	837	862	292	857	864	870	843	1282
3 畔	Ţ	THC量(g/km)	0.11	0.11	0.10	60'0	0.12	0.13	0.14	0.13	0.18
		スモーク (%)	4.0	4.6	4.3	3.9	4.6	4.8	5.4	5.2	10.4

[0042]

表1のエンジン評価試験結果から明らかなように、本発明に係る実施例1~8のガソリン組成物は、筒内直接噴射方式ガソリンエンジンにおいて、いずれも燃焼室内デポジットを低減することができる。特に成層燃焼時に燃料が直接当たるキャビティ内のデポジット量の低減率が大きく、デポジットへの燃料の吸着等が原因で起こる制御の乱れによると考えられるTHC量やスモーク量の増加を抑制することができる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 筒内直接噴射式ガソリンエンジン用ガソリン添加剤の提供。

【解決手段】 下記の一般式(1)で表される含窒素化合物からなる筒内直接噴射式ガソリンエンジン用燃料油添加剤。

【化1】

(一般式(1)において、 R^1 は水素または炭素数 $1\sim30$ の炭化水素基を示し、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 はそれぞれ別個に水素、炭素数 $1\sim16$ の炭化水素基などを示し、aは $1\sim200$ の整数であり、 R^6 は炭素数 $1\sim10$ の炭化水素基を示し、Dは D または D であり、D とは D は D または D を示し、D は D または D を示し、D は D または D を示し、D は D を示し、D を示

A群:-O-CO-、-CO-、-O-R-CO-など

(Rは炭素数1~6のアルキレン基を示す)

B群:水素、炭素数1~30の炭化水素基、アルカノール基など

【選択図】 なし

特平10-284068

【書類名】

職権訂正データ

【訂正書類】

特許願

<認定情報・付加情報>

【特許出願人】

【識別番号】

000004444

【住所又は居所】

東京都港区西新橋1丁目3番12号

【氏名又は名称】

日本石油株式会社

【代理人】

申請人

【識別番号】

100093540

【住所又は居所】

東京都港区西新橋3丁目5番8号 渡瀬ビル 英立

特許法律事務所

【氏名又は名称】

岡澤 英世

【代理人】

【識別番号】

100080942

【住所又は居所】

東京都港区西新橋3丁目5番8号 渡瀬ビル 英立

特許法律事務所

【氏名又は名称】

野村 滋衞

出願人履歴情報

識別番号

[000004444]

1. 変更年月日

1990年 8月17日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都港区西新橋1丁目3番12号

氏 名

日本石油株式会社

2. 変更年月日

1999年 4月 1日

[変更理由]

名称変更

住 所

東京都港区西新橋1丁目3番12号

氏 名

日石三菱株式会社

3. 変更年月日 1999年 4月 2日

[変更理由]

名称変更

住 所

東京都港区西新橋1丁目3番12号

氏 名 日石三菱株式会社